

結晶成長プロセスに関わる熱対流現象の基礎的研究

著者	増田 善雄
学位授与機関	Tohoku University
URL	http://hdl.handle.net/10097/55182

博士學位論文

論文題目

結晶成長プロセスに関わる

熱対流現象の基礎的研究

提出者

東北大学大学院工学研究科

化学工学

専攻

学籍番号 6d60

氏名 増田 善雄

指 導 教 官	宝 澤 光 紀	教 授
審 査 委 員 (○印は主査)	○宝澤光紀 教 授	
	1 鈴木 睦 教 授	2 三浦 隆利 教 授
	3 _____ 教 授	4 _____ 教 授

備考(1) 外国人留学生は、国籍を記入すること。
(2) 履歴事項は、大学入学から年次にしたがって記入すること。
(3) 博士課程の修了年月日は、学位記授与式年月日を記入すること。

①

結晶成長プロセスに関わる熱対流現象の基礎的研究

増田善雄

目次

第1章 序論	1
1.1 本研究の背景及び目的	1
1.1.1 Floating Zone法による融液からの結晶成長	2
1.1.2 溶液からの結晶成長	5
1.2 既往の研究	6
1.2.1 液層内マランゴニ対流に関する研究	6
1.2.2 Floating Zone法による単結晶育成時の熱及び融液内部の流れに 関する研究	9
1.2.3 多孔質体内二重拡散に関する研究	13
1.3 本論文の構成	15
1.4 参考文献	16
第2章 液層内マランゴニ対流に及ぼす内部発熱の影響	18
2.1 緒言	18
2.2 基礎式及び境界条件	19
2.3 結果及び考察	21
2.3.1 臨界マランゴニ数	21
2.3.2 内部発熱がない場合の液層内マランゴニ対流	22
2.3.3 内部発熱がある場合の液層内マランゴニ対流	26
2.3.4 内部発熱による液層内の対流構造の変化	29
2.4 結言	31
2.5 使用記号	32
2.6 参考文献	34
第3章 Floating Zone系融液内対流に及ぼす諸因子の影響	35
3.1 緒言	35
3.2 解析方法	35
3.2.1 FZ炉のモデル化	35
3.2.2 流れ場及び温度場に関する基礎式及び境界条件	37
3.2.3 電磁場に関する基礎式及び境界条件	39

3.2.4 座標変換	40
3.3 計算結果	43
3.3.1 輻射加熱 FZ 炉	43
3.3.1.1 融液内対流と温度場、界面形状	43
3.3.1.2 自然対流とマランゴニ対流の影響	43
3.3.1.2 周囲温度の影響	47
3.3.1.4 結晶育成速度の影響	47
3.3.2 高周波加熱 FZ 炉	50
3.3.2.1 ローレンツ力及び発熱項	50
3.3.2.2 MHD 対流の影響	51
3.3.2.3 マランゴニ対流の影響	53
3.3.2.4 融液自由表面形状の影響	54
3.4 結言	58
Appendix 3-I 高周波加熱 FZ 炉による温度場及び界面形状の変形 (融液内対流を考慮しない場合)	59
3.6 使用記号	66
3.7 参考文献	69
第 4 章 多孔質体内二重拡散による振動現象	70
4.1 緒言	70
4.2 基礎式及び解析方法	71
4.2.1 基礎式及び境界条件	71
4.2.2 計算方法	73
4.3 結果及び考察	74
4.3.1 解析解と数値計算により得られる振動解の関係	74
4.3.2 振動発生機構	75
4.3.3 振動解が得られる浮力比の範囲	80
4.3.4 パラメータの変化による振動特性の変化	82
4.4 結言	85
Appendix 4-I 側壁が等流束である場合の多孔質体内二重拡散の解析解	86
4.5 使用記号	91
4.6 参考文献	93

第5章 総括.....94

謝辞.....96

第1章 序論

1.1 本研究の背景及び目的

最近の高度情報化社会の発展に伴い、半導体を中心とする電子素子・発光素子あるいは酸化物結晶を用いた表面弾性波素子は多くの分野で利用されている。これらの固体素子の材料として、多くの場合単結晶が用いられている。これは単結晶内の構成分子の規則正しい配列様式が広範囲にわたって保たれているため、電子やフォノンの移動速度が大きいこと、散乱による減衰が少ないことなどの理由による。

現在、情報化の進展に欠かすことの出来ない通信の高容量化、高速化のため光ファイバーによる通信網の整備が国の政策として求められている。そのため光通信を支え、その入力、伝達、出力、記憶の各プロセスで用いられるオプトエレクトロニクスデバイスはより高性能であることが求められる。これらデバイスの基盤材料として高品質の酸化物単結晶が必要である。また、情報通信の高度化と相俟って、端末であるパーソナルコンピュータ、PHS、携帯電話などの普及にもめざましいものがある。これは、機器の著しい高性能化、小型化、軽量化を達成できた結果であり、半導体デバイスの高集積化、高速化によるところが大きい。このような半導体デバイスの高性能化にはその基盤材料となるシリコン等の半導体バルク単結晶の品質が直接影響を与える。

さらに、環境問題が世界的に深刻化している昨今、地球温暖化の原因と考えられる炭酸ガスや有害な廃棄物を排出することのない太陽光発電が注目されている。太陽光発電はコストがかかりすぎる問題があるが、高効率太陽電池の製造コストの低減を可能とすればいっそう普及することが考えられる。この太陽電池の材料としてシリコン単結晶を用いることが検討されている。

このように様々な用途においてシリコンをはじめとする半導体あるいは各種酸化物単結晶に対する高品質化の要求が益々高まってきている。

単結晶育成プロセスには大きく分けて、融液成長、溶液成長、そして気相成長がある。これらの単結晶育成プロセスにおいて、溶融あるいは昇華のために加熱が行われ、結晶を成長させるために冷却操作が行われる。このような加熱冷却による温度の変化、結晶化あるいは不純物の混入による濃度の変化、また温度差あるいは濃度差に起因する対流の発生など、結晶育成プロセスには様々な移動現象が関与しており、それらは結晶の品質に重大な影響を及ぼす。例えば、融液からの単結晶成長において結晶方位、不純物濃度や結晶中

の欠陥密度などの問題において、融液あるいは結晶中の温度場あるいは融液内の対流が大きな影響を与えていることが知られている。それを制御するためには装置内の移動現象についてより深く理解する必要がある¹⁾²⁾。

このように結晶育成装置内の移動現象についての知見を得ることは、高品質の単結晶を育成する上で必要不可欠なことである。しかしながら、多くの場合結晶育成プロセスの温度、流速等の直接測定は困難である。例えば融液成長の場合、融液は高温で不透明であるため流れの観察は困難である。しかも、シリコン融液では熱電対を腐食させることもあり温度測定も困難である。また溶液成長においても結晶と溶液の共存領域、いわゆるマッシーゾーン(mushy zone)内の流れを観察するのは困難である。また結晶育成プロセスについてモデル化し、基礎式と境界条件から解析解を求める方法も定性的な議論を行う場合には有効ではあるが、解析解により得られるパラメータの範囲がかなり限定され、しかも実際の装置を大幅に単純化する必要があるなど欠点も多く、あまり実用的ではない。そのため結晶成長プロセスにおける移動現象の解析に計算機シミュレーションを用いる研究が注目されている²⁾³⁾。

本研究においては単結晶育成方法のうち融液成長と溶液成長に関連した熱対流現象の基礎研究を行う。なお融液成長として Floating Zone 法を取り上げ、溶液成長としては一方向凝固問題を取り上げることとする。

1.1.1 Floating Zone 法による融液からの結晶成長

融液からの結晶成長法としてはチョクラルスキー法、Floating Zone 法、ブリッジマン法などがある。チョクラルスキー法はるつぼ内の融液に種結晶を接触し、それを回転しながらゆっくりと引き上げる方法である。この方法は大口径の単結晶を得る方法として広く用いられており、半導体用のシリコン単結晶のほとんどはこの方法により作られる。ブリッジマン法は容器中ですべての材料を一旦融解し、容器あるいは炉体を移動して融液の端から固化していく方法である。この方法は化合物半導体の育成などに使われる方法である。この2種類の方法に共通しているのは融液を保持するるつぼ等の入れ物が必要なことであり、そこからの不純物の混入をさけることは出来ない。しかし、Floating Zone(以降 FZ と省略する場合あり)法においては融液を保持するるつぼは必要なく、それだけ高純度な結晶育成が可能である。FZ 法による単結晶育成の概略図を Fig.1-1 に示す。この図は酸化物単結晶育成時によく用いられるイメージ炉による FZ 炉と、シリコンの場合に用いられる

高周波加熱 FZ 炉について示したものである。FZ 法による結晶育成において、焼結等により固められた多結晶体を上部に保持しておき、多結晶体のごく一部分を加熱し、熔融する。下部には種結晶を設置し、熔融部分を移動させる、つまり保持しているロッドを全体的に下げていくことにより徐々に単結晶を育成する。融液は融液自身の表面張力により保持されていて容器と接触する必要はないが、融液長を長くしすぎると融液形状が不安定化するなど、溶融体の制御が難しいという欠点がある。加熱方法としては局所的な加熱を行う必要があるため、酸化物単結晶育成時によく用いられるイメージ炉による集光加熱、シリコンのような電気伝導度の大きい材料に用いられる高周波加熱などがある。なお高周波加熱によるシリコン単結晶育成においては、発生するローレンツ力を利用して融液部分を細くし、結晶部分を太くする方法を用いて直径が 10cm 以上のシリコン単結晶の育成が可能である。この方法を利用して育成したシリコン単結晶は、ディスクリットデバイスあるいはパワーデバイス用の単結晶として工業的に利用されている。また、チョクラルスキー法による単結晶育成が困難とされていて、光通信用の偏光子の材料であるルチル(TiO_2)の工業的単結晶育成には集光加熱 FZ 炉が用いられている²⁴⁾。

FZ 法による単結晶育成に関しては融液の不安定性、多結晶体と結晶部分の接触、融液内の温度変動による結晶の不均一性などの問題が発生することがあるため融液内での温度が結晶の性質に直接関係があることが予想される。ここで FZ 法による単結晶育成時の熱移動に関連する諸現象について Fig.1-2 に示す。加熱方法によって表面上での発熱のみを考えればよいものと内部発熱を考慮する必要があるものがある。また熱移動に関しては熱伝導だけでなく、融液内では自然対流や表面張力差により発生するマランゴニ対流、結晶及び多結晶体の回転に伴う強制対流、高周波加熱の場合には電磁力に起因する MHD 対流が発生し、複雑な流れが生じていることが予想される。このように FZ 法による単結晶育成に関しては融液内の対流に関して正確な知見を得ることが必要である。特に融液内で主流になっていると考えられるマランゴニ対流、高周波加熱の場合に主流になっていると考えられている MHD 対流について明らかにする必要がある。

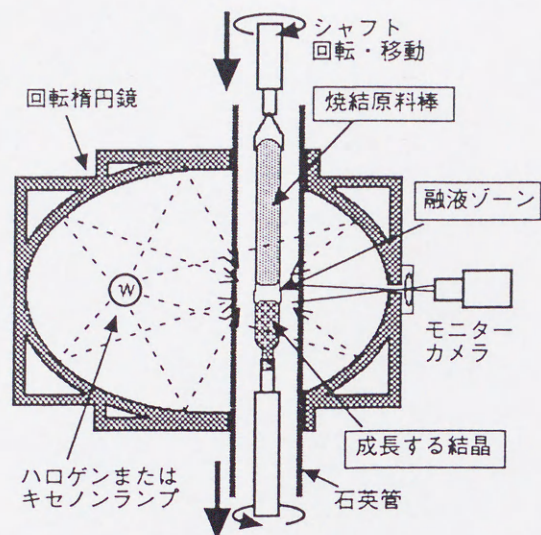
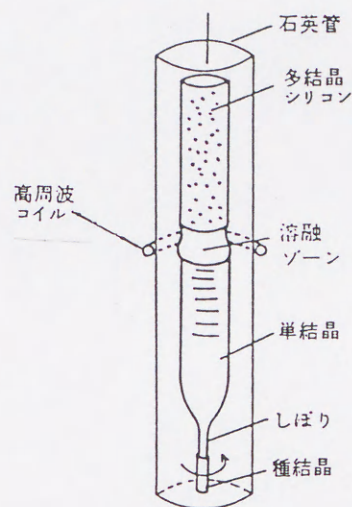


image furnace heating



radio-frequency heating

Fig. 1-1 FZ single crystal growth system

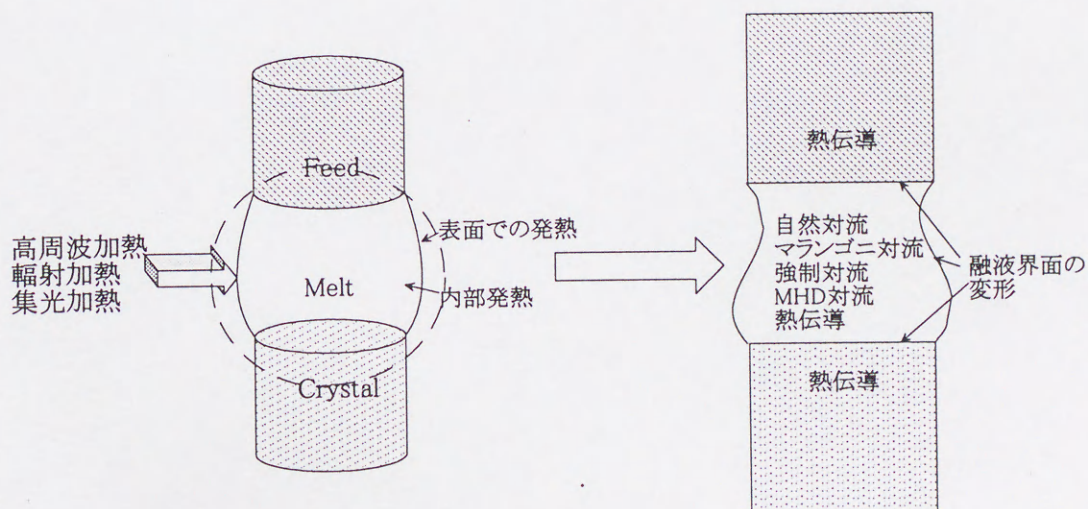


Fig. 1-2 Heat transfer phenomena in FZ system

1.1.2 溶液からの結晶成長

次に溶液からの結晶育成について考えてみる。Fig.1-3 に溶液成長における物質移動についていくつかの研究が行われている $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-H}_2\text{O}$ 系の相平衡図を示す⁵⁾⁶⁾⁷⁾。この系での共晶温度及び濃度は -2.1°C 、 $5.9\text{wt}\%$ であり、初期濃度が共晶濃度よりも高い場合は炭酸ナトリウムが先に結晶化する。そして温度が Fig.1-3 で示される $\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ -liquid の領域にある場合、固相はデンドライト成長し、固液が共存している。この部分はマッシーゾーン(mushy zone)と呼ばれている部分である。このような系の一方向凝固過程を模式的に描いた図を Fig.1-4 に示す。装置内においては、温度による対流のみならず、相平衡図から理解されるように2成分系の凝固は1成分系とは異なり、液相と固相の組成は一致しないため濃度勾配が生じる。つまり温度差による対流と濃度差による対流が共存する、いわゆる二重拡散対流が発生している。マッシーゾーン内では、その構造から多孔質体内の二重拡散対流であると考えられている⁶⁾。また、多成分系の凝固問題などにおいても、デンドライト成長が起こっていることが確認され、マッシーゾーン内の流れが合金の品質に大きな影響を与えていることが考えられる⁸⁾。

つまり、溶液からの結晶成長について理解するためには、多孔質体内二重拡散について明らかにする必要がある。

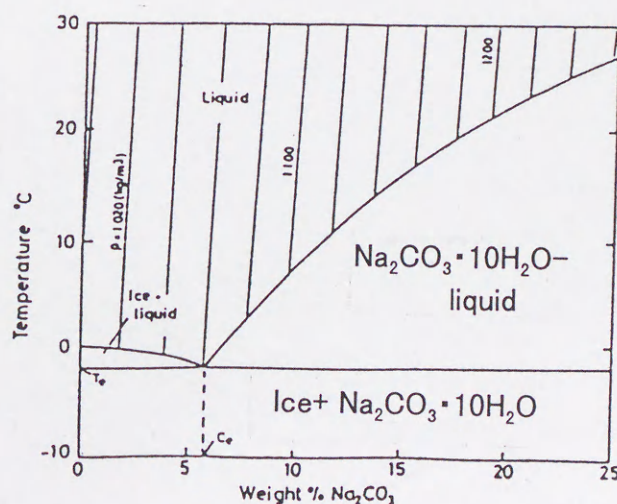


Fig.1-3 Equilibrium phase diagram for $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-H}_2\text{O}$

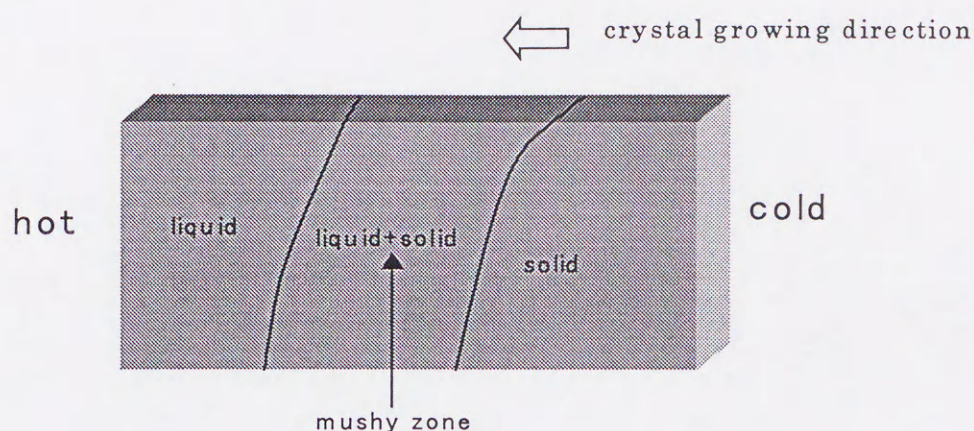


Fig.1-4 Schematic diagram of crystal and liquid and mushy zone in solution crystal growth

1.2 既往の研究

本論文の 2 章から 4 章に関連する既往の研究についてまとめるとともに、それらに対する本研究の位置づけを明確にする。

1.2.1 内部発熱及びマランゴニ対流に関する研究

下方加熱液層内対流に関しては、対流発生に関するマランゴニあるいはレイリー不安定性の問題として 20 世紀初頭から数多くの理論的な研究が行われていた。特にマランゴニ不安定性つまり対流発生の臨界マランゴニ数を求める線形安定性理論を用いた解析が Pearson⁹⁾、Nield¹⁰⁾により行われた。彼らの解析解によると無限に長い液膜層で、フラットな界面を考えた場合、ビオー数を 0 とした場合の臨界マランゴニ数はおよそ 80 であることが明らかにされた。なおマランゴニ数の基準温度は上下面の温度差を用いている。これらの研究が基になってマランゴニ対流についての研究が進められている。例えば漸近法を用いて分岐図を作成した Sivashinsky¹¹⁾の解析がある。

しかしこのような単純な系についても実験は困難である。なぜなら、地上においては 1G がかかっているため密度差による自然対流の影響が避けられないからである。このため精密な実験を行うためには微小重力環境で実験する必要がある。最近になって宇宙環境の利用についての研究が始まり、微小重力研究についての重要性が明らかになるにつれて、微小重力下における実験を行う環境が整いつつある。例えば北海道の上砂川町にある地下落下実験施設においては約 10 秒間の微小重力が得られる¹²⁾¹³⁾。さらに長時間の微小重力環境を得るためにはフリーフライヤーなどを使った実験などがある。このように微小重力環境を利用してマランゴニ対流に関しての実験を行った例は数多い。しかしそれらのほとんどは二液層あるいは三液層中のマランゴニ対流に関する実験である。一液層内のマランゴニ対流の宇宙実験というのは Dupont ら¹⁴⁾によるものしか見あたらない。Dupont ら¹⁴⁾は液体内の温度分布を与えた場合のビオー数と対流発生の臨界マランゴニ数との関係を解析的に求めて、それと TEXUS21 というロケットを用いて実験を比較し、両者がよく一致したと述べている。

さて融液からの酸化物単結晶育成時に、融液が半透明であることに起因する現象あるいはそれについての解析がいくつか報告されている。例えば、岡野ら¹⁵⁾¹⁶⁾はチョクラルスキー法による様々な酸化物単結晶育成時に結晶の吸収係数の違いが結晶の界面形状に影響を及ぼすことを報告している。しかしこれらの研究においては、融液の内部発熱の影響による流れの影響について直接の影響をみているわけではない。内部発熱が関与する対流問題については、太陽熱からの蓄熱実験を西村ら¹⁷⁾¹⁸⁾が行い、領域上部からの光による加熱によって発生する自然対流についての考察を行っている。内部発熱とマランゴニ対流に関しては一様な内部発熱がある場合について Wilson¹⁹⁾が解析解及び数値解を求めている。

Lam と Bayazitoglu²⁰⁾²¹⁾はガラス融液内でのマランゴニ対流を念頭に置き、外部から光を模擬した加熱により臨界マランゴニ数がどのように変化するかについて解析解を求めた。彼らが用いた物理モデルを Fig.1-5 に示す。無限の長さを持つ厚さ d の液膜層を考え、下方加熱つまり $T_1 > T_2$ でありさらに外部から光強度 I_0 の加熱がなされているものとする。無次元流入熱量を N_s 、光学厚さを τ とする。解析において底部における反射率 r_1 を 0 とし、代表長さを d 、代表温度を $\Delta T = T_1 - T_2$ とする。このような条件から Lam らが線形安定性理論により求めた臨界マランゴニ数と無次元流入熱量 N_s とビオー数の関係を Fig.1-6 に示す。この研究において、臨界マランゴニ数と N_s 、ビオー数、光学厚さ τ の関係について求めている。それによって、外部からの加熱に伴い、臨界マランゴニ数は低下することを明らかにしている。本論文の第 2 章においてはこの論文に用いられた問題について、臨界マランゴニ数を超える部分について数値解析を行っている。なお最近のマランゴニ対流研究につ

いての総説としては今石²²⁾によるものがある。

このように線形安定性理論により導出された解析解では対流発生の臨界マランゴニ数は得られるものの、それ以上マランゴニ数が大きくなった場合については対応できない。そこで本論文では、臨界マランゴニ数以上となった場合の対流の様子と内部発熱との関係について計算機シミュレーションにより明らかにする。

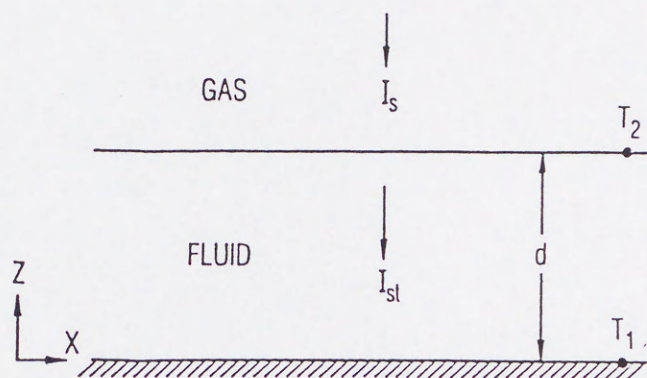


Fig. 1-5 Schematic diagram of the Marangoni instability with inner heating

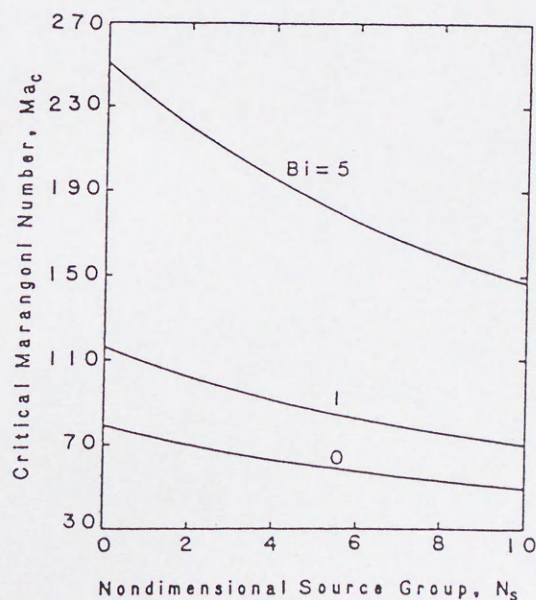


Fig.1-6 Critical Marangoni number vs. N_s for $\tau=0.5$. Effect of Biot number and inner heating.

1.2.2 Floating Zone 法による結晶育成時の熱及び融液内部の流れに関する研究

FZ法による単結晶育成時の熱及び融液内部の流れに関してはFig.1-2のような様々な現象が発生する。加熱方法としては図にあるように高周波加熱、輻射加熱、集光加熱の3種類が考えられ、それぞれ発熱特性が異なる。また加熱方法と育成する単結晶の種類によって、表面のみの発熱を考えればよい場合と内部発熱を考える必要がある場合がある。そして融液内部での熱移動に関する現象を考えてみても、熱伝導、自然対流、マランゴニ対流、強制対流、電磁場によるMHD対流が考えられる。そして融液自由表面形状、融液/多結晶界面、融液/結晶界面の変形は融液内部の熱や流れに大きな影響を与えると考えられる。このような複雑な現象について様々な実験、計算が行われている。

まず、実際の結晶育成装置を用いた研究は非常に困難で、現在のところ特殊なトレーサーとX線を用いて融液内部を可視化するという方法を用いるしかない。この方法を用いて高周波加熱FZ法によるシリコン単結晶育成中のその場観測を行ったものに宗像²³⁾の研究がある。さらに微少重力実験においてイメージ炉による集光加熱時のシリコン液柱における振動マランゴニ対流の観察を行った中村ら²⁴⁾の研究がある。このような研究によって融液/多結晶及び融液結晶界面のその場観察が可能となったり、内部の流れについての理解が可能である。しかし、一般的に融液内には複雑な要因の組み合わせで対流が発生しているため、トレーサーの動きによって得られる流れの原因等について理解するのは困難である。

このように実験のみでは明らかに出来る範囲が限定されているので、計算機シミュレーションによる研究が数多く行われている。典型的な例として、円柱状の固体壁にはさまれている融液部分のみについて着目し、融液自由表面形状、各種パラメータ、境界条件の違いなどによる、マランゴニ対流やMHD対流の変化、振動が発生する臨界マランゴニ数、またそのときの振動の機構について解析が行われている。例えば、Riahi²⁵⁾らは融液近傍に点として表すことの出来る高周波コイルがあるものとして融液自由表面に作用する静水圧、表面張力そしてローレンツ力を考慮した自由表面形状を求めている。この結果からローレンツ力により融液は細くなる方向に働き安定性が増加することがわかった。Zhangら²⁶⁾は融液自由表面形状及び自然対流とマランゴニ対流の大きさによって、対流の強さだけでなく対流パターンも変化することを明らかにした。またKaiserら²⁷⁾はPをドープしたシリコン融液の3次元計算を行い、マランゴニ数の増加に伴い軸対称流、非軸対称流、非定常流と変化することを示し、それが実験値をよく説明していることを示した。また磁場の強さにより対流パターンは変化し、流れはマランゴニ対流を押さえる方向に働くことを明らかにした。また今石ら²²⁾²⁸⁾は上下に温度差のある液柱を考えた3次元数値解析を行い、

様々な振動型マランゴニ対流を報告している。アスペクト比 1.6、マランゴニ数が 2220、ビオー数が 0 のときの液柱内に生じる 3 次元振動マランゴニ対流について計算した結果、パルス状振動が発生するが、やがて中心近傍の温度振動の位相が狂い始め、回転型振動流に移行することがわかった。このような研究は融液内の流れの変化を知る上で重要である。しかしこれらの研究は FZ 法における融液の挙動について個別に求めたものであり、FZ 炉に関して正確に理解するためには融液だけでなく、多結晶、結晶部分も考慮し、加熱方法も考慮した総合熱解析が必要であると思われる。

次に FZ 法による単結晶育成時の総合熱解析について紹介する。その場合、加熱方法のモデル化が問題となるが、輻射加熱をモデル化する場合は周囲温度にガウス分布を与えてモデル化する場合が多い。例えば Duranceau ら²⁹⁾は熱伝導支配つまり対流の影響を無視した輻射加熱 FZ 炉におけるシリコン単結晶育成時の温度場と融液の界面形状について有限要素法を用いて計算している。そして結晶成長速度、ボンド数、結晶と融液の接触角を変化させて温度場への影響について計算し考察した。Lan ら³⁰⁾³¹⁾は高プラントル数流体である NaNO_3 と低プラントル数流体であるシリコンを解析対象として輻射加熱 FZ 炉内の解析を行った。解析手法としては差分法を用い、境界適合座標を導入している。その結果 NaNO_3 とシリコンの結果を比較した。また、シリコンについては熱伝導のみを考慮した場合、自然対流のみを考慮した場合、自然対流とマランゴニ対流を考慮した場合などについて計算を行った。その計算に用いた数値モデルを Fig.1-7 に、計算結果を Fig.1-8 に示す。この図から、シリコンのような低プラントル数流体でも対流の影響により温度場や固液界面形状が変化すること、そして融液内ではマランゴニ対流が支配的なことを明らかにした。しかし、彼らは様々なパラメータあるいは界面変形について詳細に検討しているわけではなく、融液内に及ぼす諸因子(マランゴニ対流、界面変形、高周波加熱の場合は MHD 等)の相互の影響について不明な点が多い。

また、加熱方法のモデルとして融液近傍で熱流束を与える方法を行っている研究者もいる。Chen ら³²⁾はそのようなモデルを用いてモリブデン Mo や LiNbO_3 単結晶育成時の融液内流れについての数値解析を行っているが、この方法はあまりに単純であり、ある範囲で熱流束が一定という条件は現実的には考えられない。そのため、これ以降に出された論文³³⁾ではガウス分布に基づいた熱流束を与えている。

このように輻射加熱による総合熱解析について様々な計算が行われている。これらの研究に基づいて考えてみると、輻射加熱のモデル化としては、ガウス分布により周囲温度を仮定する方法が一般的である。この方法を用いて、FZ 法による単結晶育成時の熱流動に関して Lan ら³⁰⁾³¹⁾が行った以上に詳細な検討が必要と考える。つまりマランゴニ数をはじ

めとするパラメータの変化による対流の変化及び界面の変形を計算によって詳細に検討することが必要である。さらに実際の FZ 炉の改良を目指すという点から、FZ 法における単結晶育成時の操作条件である加熱量や結晶成長速度について検討する必要があると考える。

次に高周波加熱 FZ 炉に関する研究について紹介する。Mühlbauer らは 1983 年の論文³⁴⁾で実際のシリコン単結晶育成装置を用いた実験により界面形状を観察し、その形状を適合させた数値解析を行った。実際のシリコン FZ 炉ではローレンツ力によりコイル近傍で融液が細くなる現象があり、その性質を利用して大口径の結晶を作成する方法が一般的に用いられている。Mühlbauer ら³⁴⁾は結晶径が 76mm のシリコン単結晶の作成を行う場合の MHD 対流等を計算し、融液内は MHD 対流が支配的であるということを結論としている。しかし同じ Mühlbauer らの 1995 年の論文³⁵⁾では全く違う結論を得ている。彼らは結晶径が 100mm を越えるような系について同じような計算を行い、計算によって得られた界面形状は実験によるものとよく一致したと報告しているが、融液内の流れは自然対流及び結晶あるいは多結晶体の回転による強制対流が支配的であり、マランゴニ対流と MHD 対流の影響はあまり強くないという計算結果を得ている。このような全く異なる結果がなぜ得られたのか、また実際のシリコン FZ 融液内では何に起因する対流が支配的であるのかということについて解明する必要があると思われる。

以上のことから本論文では、FZ 法による単結晶育成時の熱及び融液内の流れについての総合熱解析を行う。そして FZ 法による単結晶育成時の熱流動に対する理解のため、融液内対流に及ぼす諸因子の影響を正確に把握する計算及び結晶育成時に直接関連するパラメータを変えた計算を行う。また、実際の育成プロセスにおける操作因子である周囲温度や結晶育成速度についても検討し、さらに高周波加熱 FZ 法の場合には融液内の対流について MHD 対流やマランゴニ対流に関しての計算を行うことにより、融液内の対流に影響している諸因子について明らかにする。

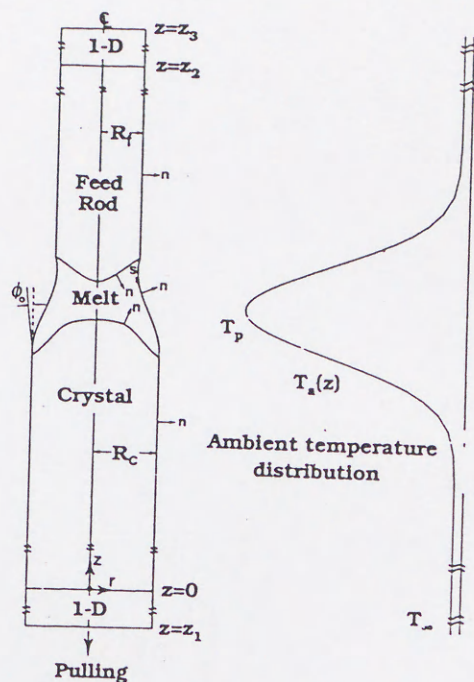


Fig.1-7 Schematic diagram of FZ growth system

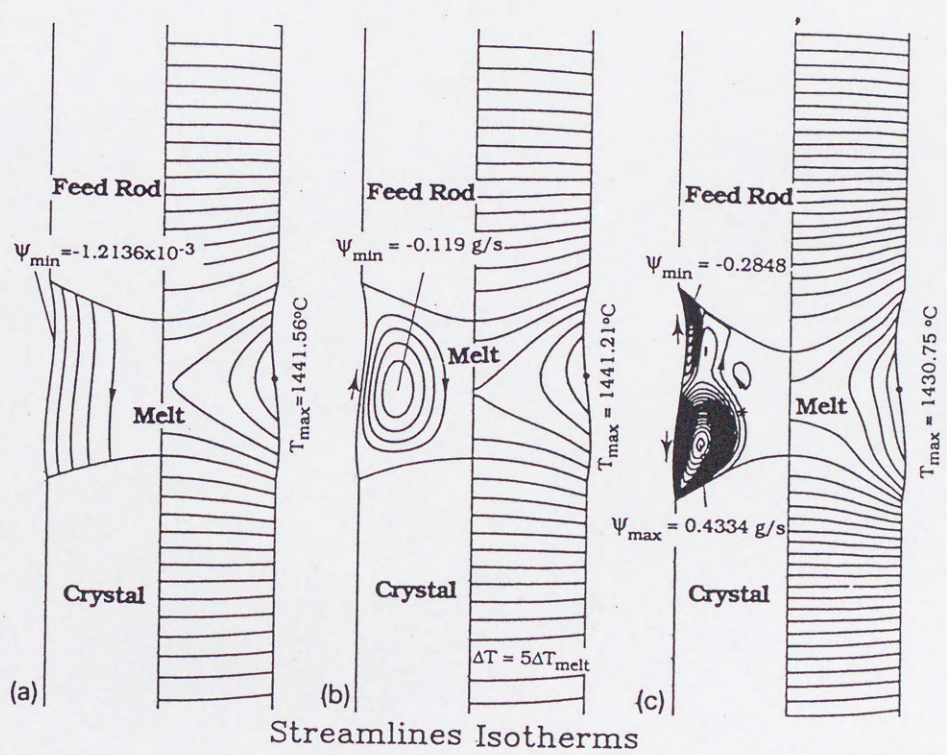


Fig.1-8 Calculated results for a Si feed rod, crystal and melt based on (a)conduction; (b) natural convection; (c)Marangoni and natural convections.

1.2.3 多孔質体内二重拡散に関する研究

二重拡散対流は本研究で対象とする溶液からの結晶成長問題のみならず、以下に述べるような電気化学的現象など広い分野で観察される。また、応用面だけでなく、この現象の強い非線形性のため対流の振動、パターンの分岐等、流体力学的にも興味深い現象が現れるためこれまで多くの研究が行われてきた。

これらの研究について、まず多孔質体ではない系について紹介する。電気化学の分野においては銅精錬の電極間の二重拡散について Alavyoon³⁶⁾は解析解と数値解を求めている。また、酸化還元反応時の電極間の二重拡散については Ikeshoji ら³⁷⁾が数値解析を行い、側方加熱あるいは下方加熱の場合それぞれについて、電極にかけられる電流密度の変化による対流パターンの変化について明らかにしている。

結晶成長の分野における熱物質移動に関する研究としては $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 系³⁸⁾³⁹⁾⁴⁰⁾や $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-H}_2\text{O}$ 系⁵⁾⁶⁾⁷⁾がよく用いられている。西村ら⁵⁾は、 $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-H}_2\text{O}$ 系の凝固実験において二重拡散対流セルが発生する条件を明らかにしている。さらに多孔質体と液体中両方の二重拡散についての研究としては Neilson ら⁶⁾によるものがある。彼らは西村ら⁵⁾による研究と同じ $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-H}_2\text{O}$ 系において、二重円筒管内における内部の円筒部分からの凝固プロセスに関する実験及び数値解析を行った。計算においてはマッシーゾーンを多孔質体と考えた二重拡散対流の数値解析を行っており、実験値とのよい一致を得ている。なお凝固プロセス一般における二重拡散対流の研究については西村⁸⁾による総説がある。

二重拡散対流はその非線形性の強さにより、単純な系においても多重解や振動解が得られることがある。Chang ら⁴¹⁾は正方形の領域内で左右両壁面が温度一定及び濃度一定という条件下で、温度と濃度の対流の向きが反対の場合には振動解が計算で得られることを明らかにした。また西村ら⁴²⁾は同じ境界条件でアスペクト比(縦/横)が2の場合について振動解及び多重解が計算によって得られることを示した。また、Zhou ら⁴³⁾は結晶成長プロセスを模擬した側壁の温度一定で濃度勾配一定という条件でも計算により振動解が求められることを示した。このように単純な境界条件で、しかもレイリー数がさほど大きくない場合に振動が発生するというのは興味深い現象である。

さて多孔質体内での二重拡散についても上記のような単純な系についての研究が数多く行われている。例えば Mamou らは⁴⁴⁾ 左右の面を熱流束及び濃度流束一定とした場合の正方形内の二重拡散についての数値解析を行っている。またこのような境界条件を持つ系について Trevisan ら⁴⁵⁾は上下方向に無限の長さを持つものとして多孔質体内二重拡散の解析解を求めている。しかし Trevisan らは「境界層から遠い部分での温度及び濃度勾配

は 0 になる」といった条件を用いて解析解を求めていた。この条件を用いるとルイス数が 1 の場合以外は正確な解が得られない。またこれらの解析解及び数値解はすべて定常を仮定しているので振動解は得られていない。Alavyoon⁴⁶⁾⁴⁷⁾はこの誤りを指摘し、解析的及び数値的にヌッセルト数とシャーウッド数を求めた。しかし、この計算は定常状態に限られ、また解析解も適応できる範囲が狭い不十分なものであった。

そこで本論文では側壁を温度勾配及び濃度勾配一定という条件で温度と濃度による対流の向きが逆方向である系について数値解析を行い、振動解の得られる条件を明らかにするとともに、各パラメータの値によりその振動がどのように変化するかについて検討する。

1.3 本論文の構成

本論文は以下の5章により構成されている。

第1章は序論であり、本研究の目的及び背景を述べるとともに、既往の研究の紹介を行い本論文の立場を明確にした。

第2章は単結晶育成プロセスに及ぼす融液内対流、特にマランゴニ対流の影響を理解するための基礎的研究として、液層内マランゴニ対流に及ぼす内部発熱の影響について検討した。すなわち、光に対して半透過性の液膜層を対象とし、下方加熱に加えて液表面を通して外部から加熱された場合の、液膜層内マランゴニ対流の数値解析を行い、臨界マランゴニ数、対流構造等に及ぼす光学厚さの影響を検討した。

第3章では Floating Zone 法による単結晶育成プロセス、特に融液内対流に及ぼす諸因子の影響を明らかにすることを目的とし、輻射加熱及び高周波加熱 FZ 炉の総合熱解析を行った。またシリコン単結晶育成を対象とし、融液内対流、固液界面形状等に及ぼす成長速度等の操作因子の影響について理論的に検討した。

第4章では溶液成長時のマッシーゾーン内の熱物質移動特性を明らかにするための基礎研究として、多孔質体内二重拡散による振動現象について数値シミュレーションを行うことにより、振動現象に及ぼす諸因子の影響を理論的に検討した。

第5章は本論文の総括である。

1.4 参考文献

- 1) 高須新一郎、「結晶育成基礎技術」、東京大学出版会
- 2) 千川圭吾編著、「バルク結晶成長技術」、培風館
- 3) 日本機械学会編「伝熱工学の進展 第1巻」、養賢堂
- 4) 「21世紀のエレクトロニクスを支える結晶材料と結晶技術」 Report on Melt Growth Meeting 14
- 5) 西村龍夫, et al; 日本機械学会論文集(B編), 58, 1992, 490
- 6) D.G. Neilson et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 33, 1990, 367
- 7) M.E. Thompson, et al; J. Fluid Mech. 187, 1988, 409
- 8) 西村龍夫; 化学工学, 61, 1997, 924
- 9) J.R.A. Pearson; J. Fluid Mech., 4, 1958, 489
- 10) D.A. Nield; J. Fluid Mech., 19, 1964, 341
- 11) G.I. Sivashinsky; Physica 4D, 1982, 227
- 12) T. Mori, et al; Microgravity Sci. Technol., 4, 1993, 238
- 13) 江上侑雄; 日本マイクログラビティ応用学会誌, 9, 1992, 209
- 14) O. Dupont, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 35, 1992, 3237
- 15) 岡野泰則, et al; 日本結晶成長学会誌, 19, 1992, 283
- 16) Y. Okano, et al; J. Crystal Growth, 141, 1994, 383
- 17) 西村誠, et al; 化学工学論文集, 13, 1987, 435
- 18) 西村誠, et al; 化学工学論文集, 16, 1990, 1038
- 19) S.K. Wilson; Acta. Mechanica, 123, 1997, 63
- 20) Y. Bayazitoglu, et al; J. Heat Transfer, 109, 1987, 717
- 21) T.T. Lam, et al; Acta. Astronautica, 17, 1988, 31
- 22) 今石宣之; 伝熱研究, 36, 1997, 23
- 23) 宗像鉄雄; 化学工学会第30回研究発表要旨集, 第2分冊, 1997, 148
- 24) 中村新 et al; 日本マイクログラビティ応用学会誌, 15, 1998, 5
- 25) D.N. Riahi, et al; J. Crystal Growth, 94, 1989, 635
- 26) Y. Zhang, et al; Int. J. for Numerical Methods in Fluids, 14, 1992, 197
- 27) T. Kaiser, et al; J. Crystal Growth, 183, 1998, 564
- 28) N. Imaishi, et al; Proc. 2nd Europ. Symp. Fluids in Space, 1996, 67
- 29) J.L. Duranceau, et al; J. Crystal Growth, 75, 1986, 367

- 30) C.W. Lan, et al; J. Crystal Growth, 108, 1991, 351
- 31) C.W. Lan, et al; J. Crystal Growth, 118, 1991, 517
- 32) J.C. Chen, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 37, 1994, 1733
- 33) J.C. Chen, et al; J. Crystal Growth, 154, 1995, 98
- 34) A. Mühlbauer, et al; J. Crystal Growth, 64, 1983, 529
- 35) A. Mühlbauer, et al; J. Crystal Growth, 151, 1995, 66
- 36) F. Alavyoon; Electrochimica Acta., 37, 1992, 333
- 37) T. Ikehsoji, et al; J. Electronal. Chem., 312, 1991, 43
- 38) C.Beckermann, et al; Phys. Chem. Hydrodyn., 10, 1988, 195
- 39) M.S. Christenson, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 32, 1989, 69
- 40) A.H.H. Engel, et al; Wärme Stoffübertrag, 24, 1989, 27
- 41) J. Chang, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 36, 1993, 1333
- 42) T. Nishimura, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 41, 1998, 1601
- 43) H. Zhou, et al; J. Crystal Growth, 135, 1994, 587
- 44) M. Mamou, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 38, 1995, 1787
- 45) O. Trevisan, et al; ASME J. Heat Transfer, 109, 1987, 104
- 46) F. Alavyoon; Int. J. Heat Mass Transfer, 36, 1993, 2479
- 47) F. Alavyoon et al; Transport Phenomena in Thermal Engineering, 1, 1993, 151

第2章

液層内マランゴニ対流に及ぼす内部発熱の影響

2.1 緒言

Floating Zone(FZ)法による単結晶育成時の融液内対流は、数値解析及びあるいは地上及び微小重力下での基礎実験を通して、温度差による表面張力差に起因するマランゴニ対流が支配的であると考えられる¹⁾。従って、FZ法による単結晶育成プロセスの最適化に当たっては、まず融液内マランゴニ対流の詳細を明らかにすることが重要であり、以前から理論並びに実験的に数多くの研究が行われてきた²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾⁶⁾⁷⁾⁸⁾⁹⁾。一方これまでの酸化物単結晶の融液成長に関する研究¹⁰⁾¹¹⁾¹²⁾から、酸化物融液は光に対して半透過性である可能性が考えられる。そのため育成法としてイメージ炉による集光加熱が用いられる場合、外部からの加熱光は融液の内部にまで浸透し内部加熱の形態をとることになる。このとき融液の内部発熱量及びその分布は、融液の吸収係数に依存し、またその結果融液内マランゴニ対流の様相も大きく変化することが予想される。従って、FZ法における融液内マランゴニ対流を明らかにするためには、外部からの加熱に伴う内部発熱とマランゴニ対流との関係について解明することが重要である。本章では、その基礎研究として、下方加熱された液層内マランゴニ対流に及ぼす内部発熱の影響を理論的に検討する。

下方加熱された液層内のマランゴニ対流に関する研究は、マランゴニ不安定性に関する基礎的研究として実験及び理論的に数多く行われ、また最近の微小重力実験の重要なテーマの一つである。しかし、内部発熱の影響に関する研究は線形安定性理論に基づくマランゴニ不安定性、すなわち臨界マランゴニ数 Ma_c を解析的に求めたものに限られ¹³⁾¹⁴⁾、マランゴニ数が Ma_c より大きい場合に現れる臨界マランゴニ数以降の対流の分岐現象あるいはこれに及ぼす吸収係数の影響等については不明である。本章では、Fig.2-1 に示すように、無限の長さを有する液層に対し下方からの加熱に加えて表面から光による加熱が行われている系を考える。表面から入射した光は液層を通過する間、その一部が液体に吸収されて熱に変わるが、このときの液層内のマランゴニ対流の数値計算を行った。ここでは、対流発生の臨界マランゴニ数について解析解と数値計算結果を比較するとともに、解析解では得られない $Ma > Ma_c$ における対流の構造及び分岐現象、そして内部発熱による対流の強さ及び対流構造の変化について明らかにする。

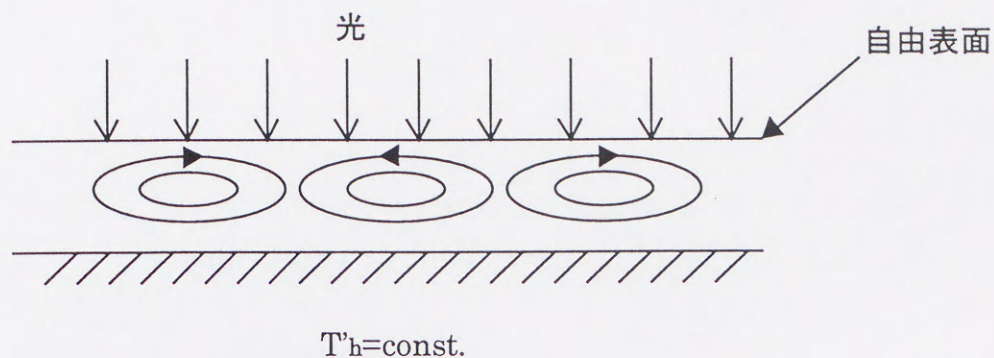


Fig.2-1 Schematic diagram of Marangoni convection in liquid film with inner heating

2.2 基礎式及び境界条件

本解析で用いた 2 次元モデルを Fig.2-2 に示す。無限に広がる液膜層を下方から加熱している場合を対象とするが、数値解析では無限長さを扱うことができないので、左右両方の壁面を断熱とし、 $u=0$ およびすべり面とした。マランゴニ対流を考えるため表面は開放され、重力は 0 つまり自然対流は発生しないものとする。液体は完全に透明あるいは半透過性とし、液表面から光による加熱が行われる。

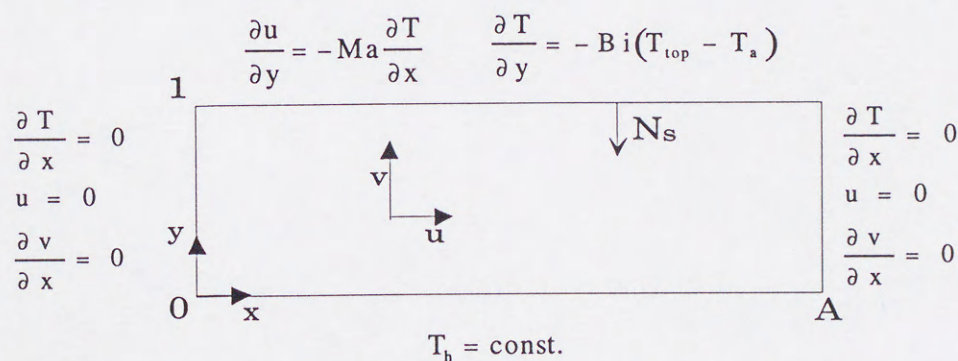


Fig.2-2 Physical model of the calculation

解析を行うに当たって、液体は非圧縮性ニュートン流体、流れは層流、また流体の熱物性値については表面張力以外は温度によらず一定と仮定する。代表長さを液層の厚さ d 、代表温度を底面の温度 T_h とすると、無次元化した基礎式は

$$\text{連続式} \quad \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad (2.1)$$

$$\text{運動方程式(x 方向)} \quad \frac{\partial u}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(uu) + \frac{\partial}{\partial y}(uv) = -\frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x}\left(\frac{\partial u}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(\frac{\partial u}{\partial y}\right) \quad (2.2)$$

$$\text{運動方程式(y 方向)} \quad \frac{\partial v}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(uv) + \frac{\partial}{\partial y}(vv) = -\frac{\partial p}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial x}\left(\frac{\partial v}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(\frac{\partial v}{\partial y}\right) \quad (2.3)$$

$$\text{エネルギー方程式} \quad \text{Pr} \left\{ \frac{\partial T}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(uT) + \frac{\partial}{\partial y}(vT) \right\} = \frac{\partial}{\partial x}\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(\frac{\partial T}{\partial y}\right) + Q \quad (2.4)$$

となる。また、境界条件は

$$0 \leq y \leq 1, x = 0 \text{ および } x = A \text{ において} \quad u = 0, \frac{\partial v}{\partial x} = 0, \frac{\partial T}{\partial x} = 0 \quad (2.5)$$

$$0 \leq x \leq A, y = 0 \text{ において} \quad u = v = 0, T = 1 \quad (2.6)$$

$$0 \leq x \leq A, y = 1 \text{ において} \quad v = 0, \frac{\partial u}{\partial y} = -\text{Ma} \frac{\partial T}{\partial x}, \frac{\partial T}{\partial y} = -\text{Bi}(T_{\text{top}} - T_a) \quad (2.7)$$

なお無次元発熱量 Q は Beer の法則に従うものとする、

$$Q = N_s \tau \exp\{\tau(1-y)\} \quad (2.8)$$

となる。ここで τ は光学厚さであり、液体の吸収係数を a とすると $\tau = ad$ で表される無次元数である。またマランゴニ数 Ma と無次元数 N_s の定義は、

$$\text{Ma} = \frac{(-d\gamma/dT)T_h' d}{\mu\nu}, N_s = \frac{\text{Id}}{kT_h'} \quad (2.9)$$

である。

以上、式(2.1)～(2.4)を境界条件(2.5)～(2.7)のもと、適当な初期条件を用いて数値的に解くことにより流れ場及び温度場の経時変化を求めることができる。後述するように、本解析では1つの Ma 数に対して多重解すなわちいくつかの対流パターンが存在する。いま、1つの対流パターンに対して、 Ma 数を変化させたときの対流構造の応答を見る場合、初期値としては、その直前の Ma 数の結果を用いた。一方、ある Ma 数に対していずれの対流パターンが優先的に出現するかを確かめる場合には以下のように解析した。すなわち静止から一様な温度場の液層を $t=0$ にて下方及び外部から加熱した際の流れ場及び温度場を追跡した。

数値解析法としては、コントロールボリューム法に基づく有限差分法を使用し、速度場については SIMPLE 法を、対流項に対する解法としてはべき乗法を用いた。なお、アスペクト比 (横/縦) A は5あるいは10とし、メッシュ数は 20×50 あるいは 20×100 とした。また、プラントル数は1.0とした¹⁵⁾。

2.3 結果及び考察

2.3.1 臨界マランゴニ数

マランゴニ対流に及ぼす内部発熱の影響を数値的に検討するに当たり、まず用いた数値計算手法の妥当性を確認する必要がある。また、無限に広がる液膜層を領域型解法である有限差分法により数値的に取り扱う場合、アスペクト比 A をどの程度に設定すれば十分であるかを明らかにする必要がある。そこで、Lam ら¹⁴⁾による線形安定性理論に基づいた臨界マランゴニ数 Ma_c に関する解析解と数値計算結果を $Bi=5.0, \tau=0.5, A=5$ の場合について比較し、その結果を Fig.2-3 に示した。ここで、数値解析においては静止かつ一様温度場を初期値とし解析をすすめた結果、対流が発生した場合を□で、発生しなかった場合を●で示した。また、解析解における臨界マランゴニ数 Ma_c と N_s の代表温度は液層上下面の温度差であることから、式(2.9)で定義した本研究のマランゴニ数 Ma と N_s を、Fig.2-3 の縦軸及び横軸のように修正した。なお数値解析結果の T_{top} には液表面の温度の平均値を用いた。数値解析結果は、解析解の臨界マランゴニ数以下では対流が発生せず、一方臨界マランゴニ数以上では対流が発生することを示している。従って、数値計算結果と解析解による結果が矛盾しないことから本章の計算法が妥当であることがわかる。また、アスペクト比 A が5以上であれば、無限の長さとして考えることに問題がないことがわかった。以降の計算は、 $A=10$ として行った。

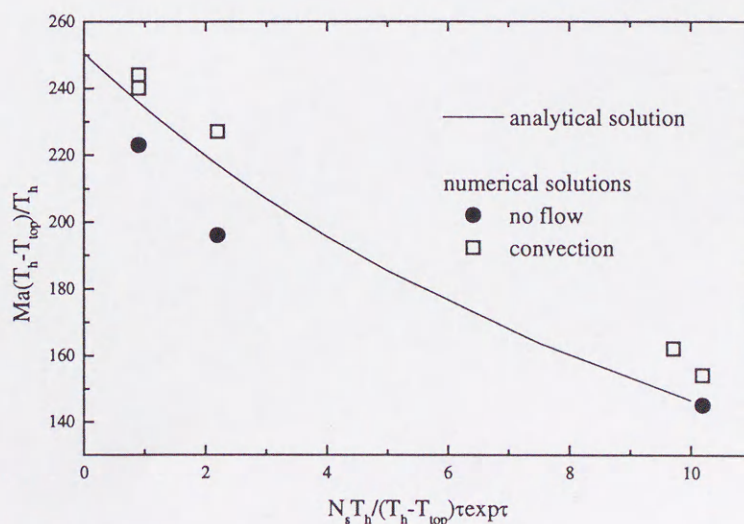


Fig.2-3 Comparison between analytical solutions and numerical solutions for critical Marangoni number

2.3.2 内部発熱がない場合の液層内マランゴニ対流

液膜層内のマランゴニ対流に及ぼす内部発熱の影響を検討する上で、その基準となる内部発熱がない($Q=0$)場合の計算結果についてまず述べることにする。ここで、 $Q=0$ とは式(2.8)から $\tau=0$ の場合、すなわち液体が完全に透明である場合に相当する。なお本章の解析では、非定常解析を行った。いずれの場合も、ある程度の時間の経過後には定常解となった。以降に示す解はすべて定常解である。

$Bi=1.0$ の場合に関して、 Ma 数が 1.0×10^3 の場合から徐々に Ma 数を上げていき、そのときのヌッセルト数 Nu がどのように変化するかについてプロットした図をFig.2-4に示す。まずマランゴニ数が臨界値にもっとも近い 1.0×10^3 では液層内に8個のセルが存在する対流パターンが得られた。ここでNield³⁾による線形安定性理論に基づく解析によると、 $Bi=1.0$ で発熱がない場合の臨界マランゴニ数は116であり、臨界波数は2.246である。一方アスペクト比 $A=10$ で8cellの場合波数は2.5となり線形安定性理論による臨界波数の値に近い。以上の結果からも臨界マランゴニ数近くでは8個のセルが得られる場合が優先的に出現することが予想される。なお、これ以降対流セルが液層内に出現する数によって解をまとめる必要があるため液層内に出現するセルの数が例えば8個であれば8cellと呼ぶこととする。得られた結果を初期値として徐々に Ma 数を上げていくと $Ma=1.0 \times 10^4$ までは同じような対流パターンの結果が得られる。しかし Ma 数がそれ以上になると液層内の対流パターンが変化し、4cellの場合に遷移する。 Ma 数を 1.0×10^5 まで上げていっても、この対流パターンは崩れないで安定して存在する。また逆に4cellの場合を初期値として Ma 数を下げていった場合、 $Ma=6.0 \times 10^3$ までは4cellの計算結果が得られるものの、それ以下の Ma 数になると8cellに戻ることをわかる。つまり Ma 数が 1.0×10^3 から 1.0×10^5 に変化する場合に分岐現象が発生し、 Ma - Nu の関係にヒステリシスが生じる、そしてこの範囲において1つの Ma 数に対して複数の解が得られることがわかる。

このように、 Ma 数が 1.0×10^3 から 1.0×10^5 という範囲において多重解が存在することが明らかとなったため、8cell、4cell以外の解についても議論する。2cell, 4cell, 6cell, 8cell, 10cellのそれぞれの対流パターンにおける熱伝達特性の変化を、 Ma 数- Nu 数のプロットとしてFig.2-5に示す。なお、ここでは液膜層内に発生した対流セルの大きさがほぼ等しい結果を中心に議論することとするが、対流セルの大きさに分布がある場合についても若干ふれることにする。また、Fig.2-6には $Ma=5.0 \times 10^3$ における10cell, 8cell, 6cellの流線と温度分布及び $Ma=6.0 \times 10^3$ における4cell, 2cellの結果を示す。Fig.2-4からかなり広い Ma 数において多重解が存在することがわかる。8cellの対流は、前出のように $Ma=1.0 \times 10^3$

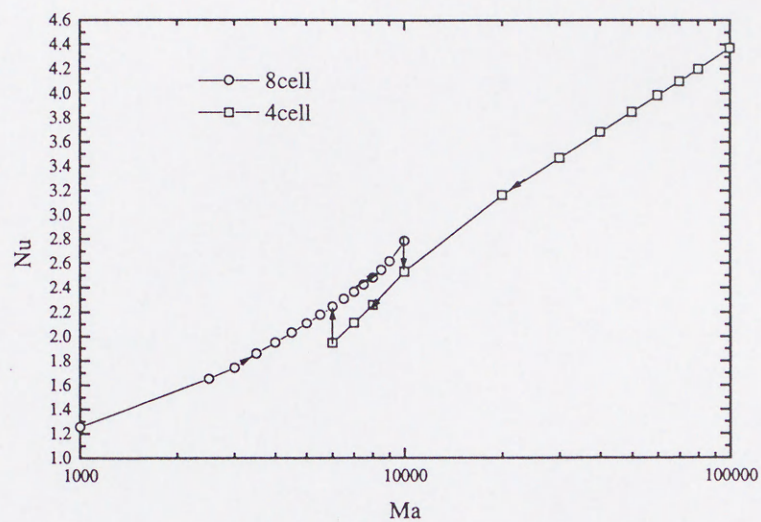


Fig. 2-4 Ma vs. Nu without inner heating

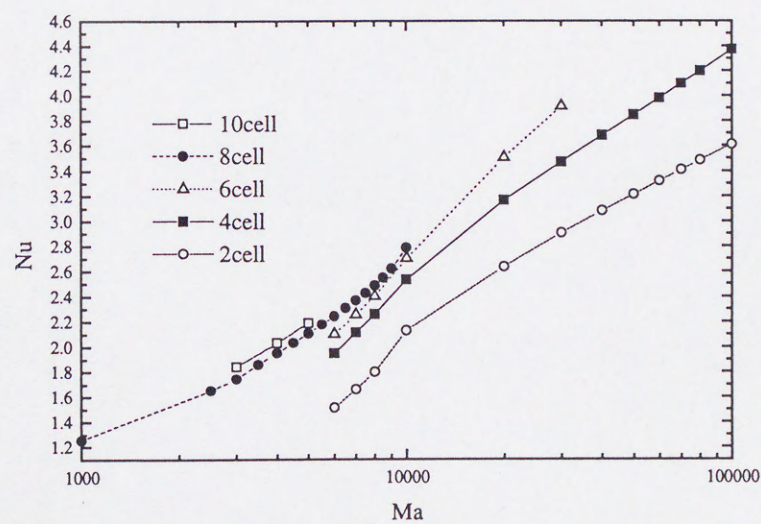


Fig.2-5 Ma vs Nu without inner heating for each convection pattern

から 1.0×10^4 の範囲に出現する。この 8cell 構造の対流に対し、 $Ma = 3.0 \times 10^3 \sim 5.0 \times 10^3$ においてはもう一つの解として 10cell の対流が出現する。10cell の場合、ヌッセルト数 Nu は常に 8cell の場合よりも大きいことがわかる。一方、 Ma 数が増加すると ($Ma > 1.0 \times 10^4$)、波数の小さい、すなわち 2, 4, 6cell の対流構造が優先的に出現する可能性があることを計算結果は示している。このとき対流セルの数が少ない方が Nu 数は小さくなる。

以上は、液層内に比較的均一な大きさの対流が出現する場合の議論であるが、初期値によっては大小異なった大きさの対流セルが存在する場合もある。Fig.2-7 は $Ma = 5.0 \times 10^3$ の場合に、静止かつ温度が一様な状態から底面の温度を $t=0$ において T_h に上げ、定常状態に達せしめたときの温度分布と流れ関数である。領域内には 6 個の対流セルが存在しているが、中心にある一対の対流セルは左右に比較し、大きくなっている。なお、このときの Nu 数は $Nu = 1.952$ であり、8cell の場合と比べてわずかに低くなっている。

このようにマランゴニ数の増加に伴い、液層内に存在する対流セルパターンが変化し、対流パターンの違いにより熱伝達特性が変化することがわかった。



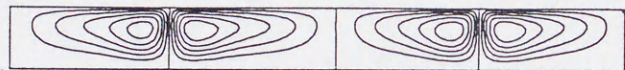
10cell



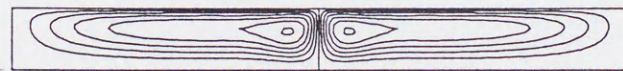
8cell



6cell



4cell



2cell

stream lines ($\Delta\phi=1.0$)

isotherms ($\Delta T=0.02$)

Fig.2-6 Stream lines and isotherms for $Q=0$

(10cell,8cell and 6cell when $Ma=5.0 \times 10^3$, 4cell and 2cell when $Ma=6.0 \times 10^3$)



stream lines ($\Delta\phi=1.0$)

isotherms ($\Delta T=0.02$)

Fig.2-7 Stream lines and isotherms for $Q=0$ for $Ma=5.0 \times 10^3$ and $Q=0$.

2.3.3 内部発熱がある場合の液層内マランゴニ対流

2.3.2 では内部発熱が無い場合についてマランゴニ数と対流パターンとの関係について明らかにした。ここでは内部発熱を伴う場合について検討する。このとき内部発熱がない場合と同様に $Ma=1.0 \times 10^3$ から 1.0×10^5 の範囲に多重解が存在し、 Ma 数の増加とともに、液層内のセル数は減少した。そのため、比較的大きな Ma 数で出現する 4cell と 2cell の場合について Ma と流れ関数の最大値 $|\phi_{\max}|$ を比較した結果を Fig.2-8 に示す。ただし、内部発熱を伴う場合の N_s, τ はそれぞれ 10, 0.5 である。図から、内部発熱がある場合は常に対流強度が小さくなり、流れが抑制されることが明らかとなった。

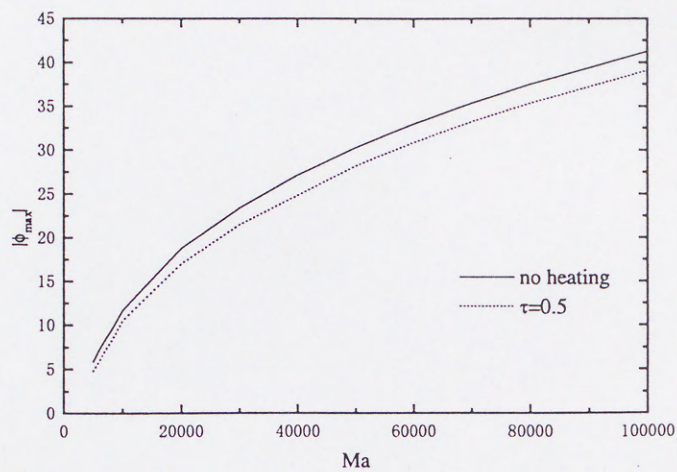
次に、内部発熱が対流パターンにどのような影響を与えるかということについて調べるため、静止かつ温度が均一な状態から底面の温度を $t=0$ において T_h に上昇し、同時に内部発熱が発生した場合の流れ及び温度場を計算した。 $Ma=3.0 \times 10^3$ のときの温度分布と流れ関数の分布に及ぼす光学厚さ τ の影響を Fig.2-9 に、同じく $Ma=6.0 \times 10^3$ の場合を Fig.2-10 に示す。どちらの場合も $N_s=1$ とし、定常解を得ている。Fig.2-9 から $Ma=3.0 \times 10^3$ においては、内部発熱がない ($\tau=0$) 場合と $\tau=0.1$ の場合に 8cell だった対流セルの数が $\tau=0.3$ と $\tau=0.5$ の場合には 10cell になっていることがわかる。また Fig.2-10 から $Ma=6.0 \times 10^3$ の場合は内部発熱がない場合に 4cell だったものが $\tau=0.1, 0.3, 0.5$ の場合には 8cell になっている。Fig.2-9 及び Fig.2-10 から τ の増加すなわち内部発熱量が増加することにより対流セルは増える傾向にあることがわかった。

これら内部発熱の影響を考慮した計算の結果、内部発熱により

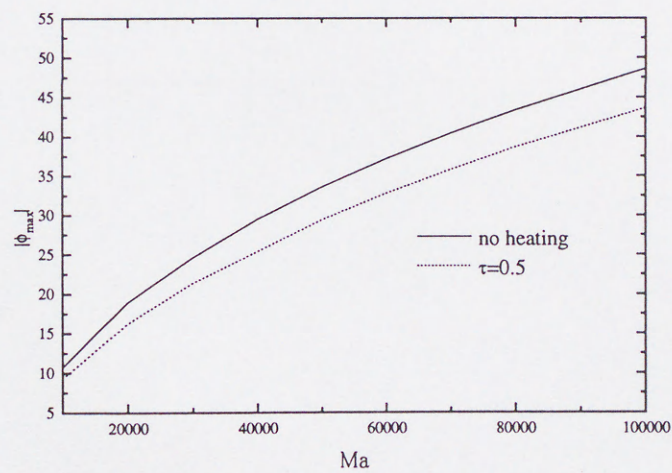
(1)流れは安定化する

(2)対流セルが増える傾向にある

ことがわかる。このことは、内部発熱による温度分布の変化に起因するものと考えられる。内部発熱のない場合には底面が最も温度の高い部分となっている。Fig.2-9 と Fig.2-10 をみても $\tau=0.1$ の場合にはやはり底面の温度が一番高い。しかし、 τ が大きく、特に $\tau=0.5$ となると温度の最も高い部分は領域の中央付近に現れる。そのため実質的に液深が浅くなることが起こる。このように内部発熱が存在する場合の温度分布の変化の様子を Fig.2-11 に示す。このときの温度分布から内部発熱が存在する場合、この系は代表長さ d が短くなり T_h が上昇したのと同じと考えることが出来る。ここで $N_s=1.0, Bi=1.0, \tau=0.5$ のときの $Ma=0$ 、つまり流れのない場合について計算したところ $y=0.122 (d=0.878)$ において $T=1.00227$ となる。式(2.9)のマランゴニ数の定義から考えて、内部発熱がない場合に比べてマランゴニ数はおよそ 88% に低下している。このように内部発熱によりマランゴニ数が低下したのと

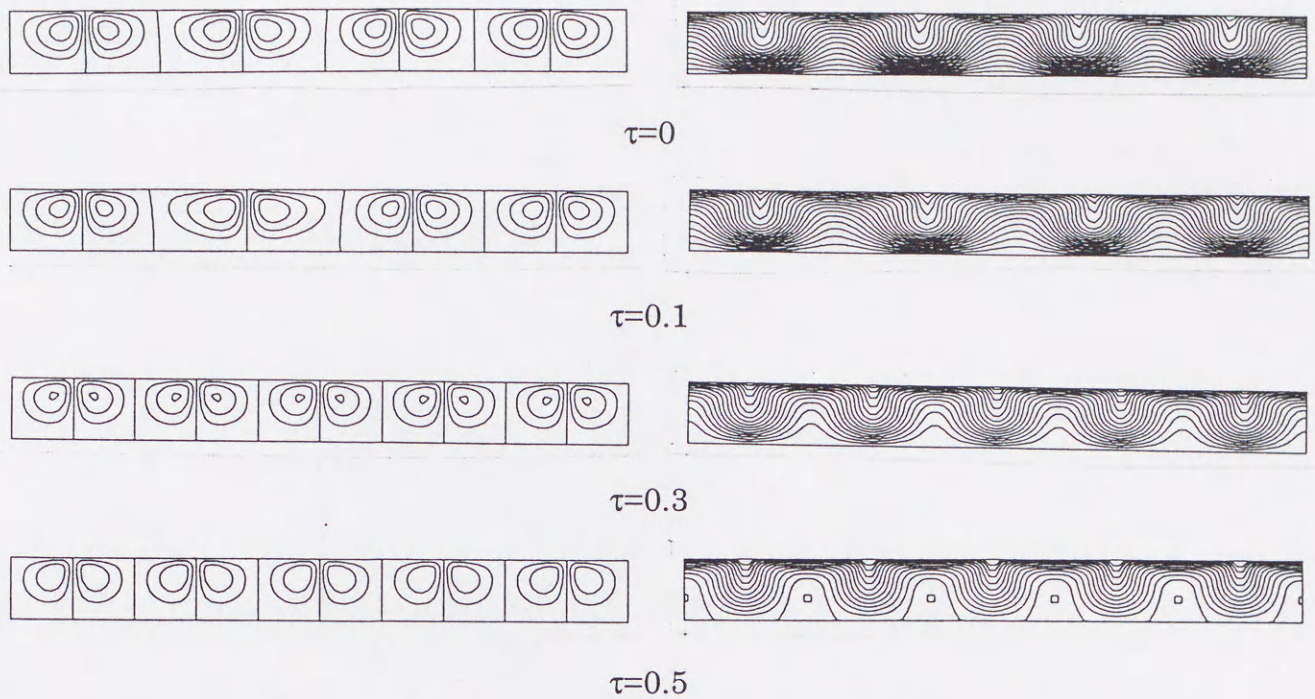


4cell

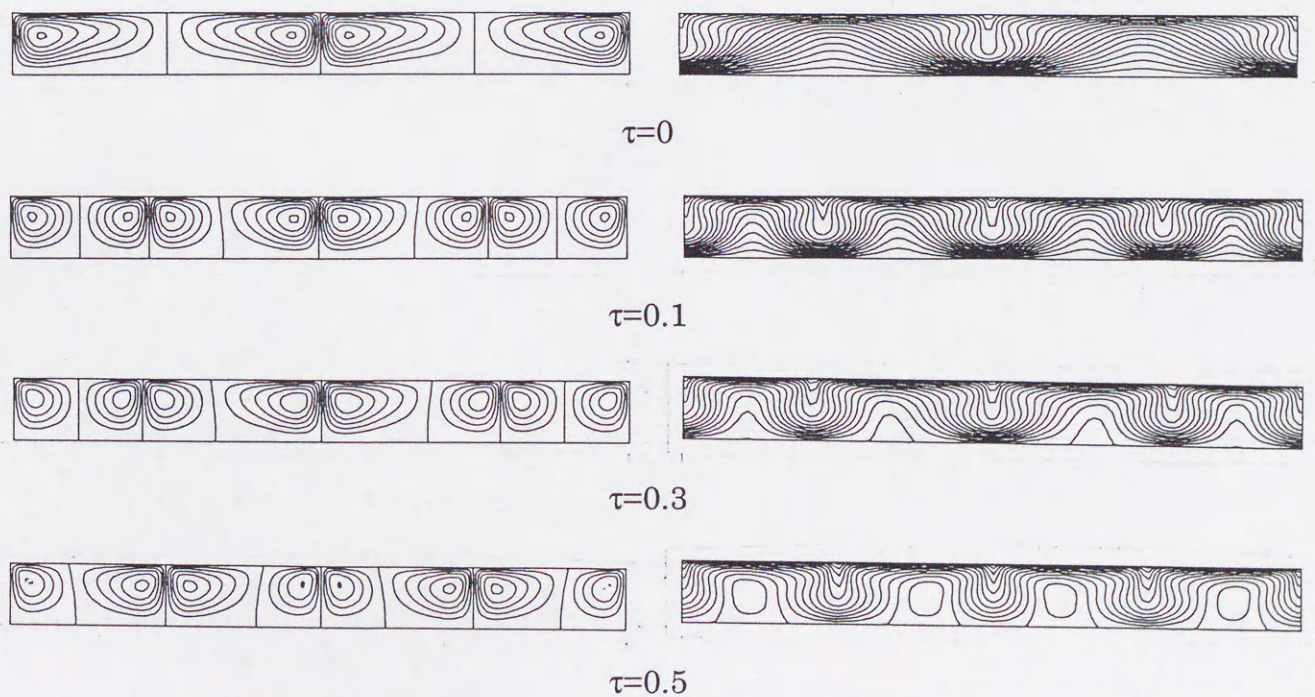


2cell

Fig.2-8 Ma vs. maximum value of stream function when $\tau=0$ and 0.5 ($N_s=1.0$)



stream lines ($\Delta\phi=1.0$) isotherms ($\Delta T=0.01$)
 Fig.2-9 Stream lines and isotherms field when $Ma=3.0 \times 10^3$.



stream lines ($\Delta\phi=1.0$) isotherms ($\Delta T=0.01$)
 Fig.2-10 Stream lines and isotherms when $Ma=6.0 \times 10^3$.

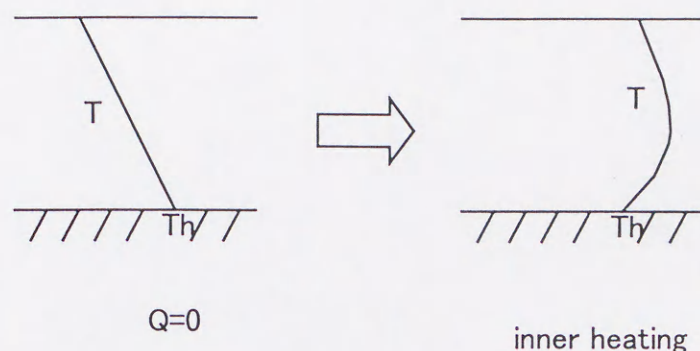


Fig.2-11 Temperature model in liquid layer with inner heating.

同じ効果があるため流れは抑制される。また見かけ上アスペクト比が大きくなることから対流セルの数が増えるという傾向となることがわかる。

2.3.4 内部発熱による液層内の対流構造の変化

2.3.3 より内部発熱によって対流の構造が変化することが示された。これより $Ma=1.0 \times 10^3$ から 1.0×10^5 までの間においては 10cell, 8cell, 6cell, 4cell, 2cell が存在し、個々の解が存在する Ma 数の範囲は内部発熱の影響によって変化することが考えられる。ここでは $N_g=1.0$ の場合について、 τ 及び Ma の違いによる 2~10cell の各セルパターンの存在範囲についてのマップを Fig.2-12 に示す。まず 8cell は臨界マランゴニ数付近及び Ma 数が比較的小さい場合に出現する。このことは線形安定性理論解から求められる臨界波数とほぼ一致することからも明らかである。

また 8cell は τ が大きくなるとその存在範囲は狭くなり、特に $\tau=0.5$ の場合は $Ma=1.0 \times 10^3$ の場合しか解は存在しなかった。10cell の場合も比較的小さいマランゴニ数近くで存在するが、その存在範囲の τ 依存性は 8cell の場合ほど大きくない。しかし、 $\tau=0.5$ の場合は 2.3.3 で述べた理由により対流セルが多くなる傾向があるため、8cell に比べて 10cell の存在範囲は高 Ma 数に及ぶことがわかる。また 6cell の場合は、8cell や 10cell の場合よりもやや大きな Ma 数において出現し、その存在範囲は τ が大きくなると若干広がることがわかる。そして 4cell 及び 2cell の場合は τ による影響はあまりなく、高 Ma の領域で出現することがわかる。

以上のように、 τ 及びマランゴニ数による 10cell~2cell の各セルパターンの存在範囲を

明らかにした。

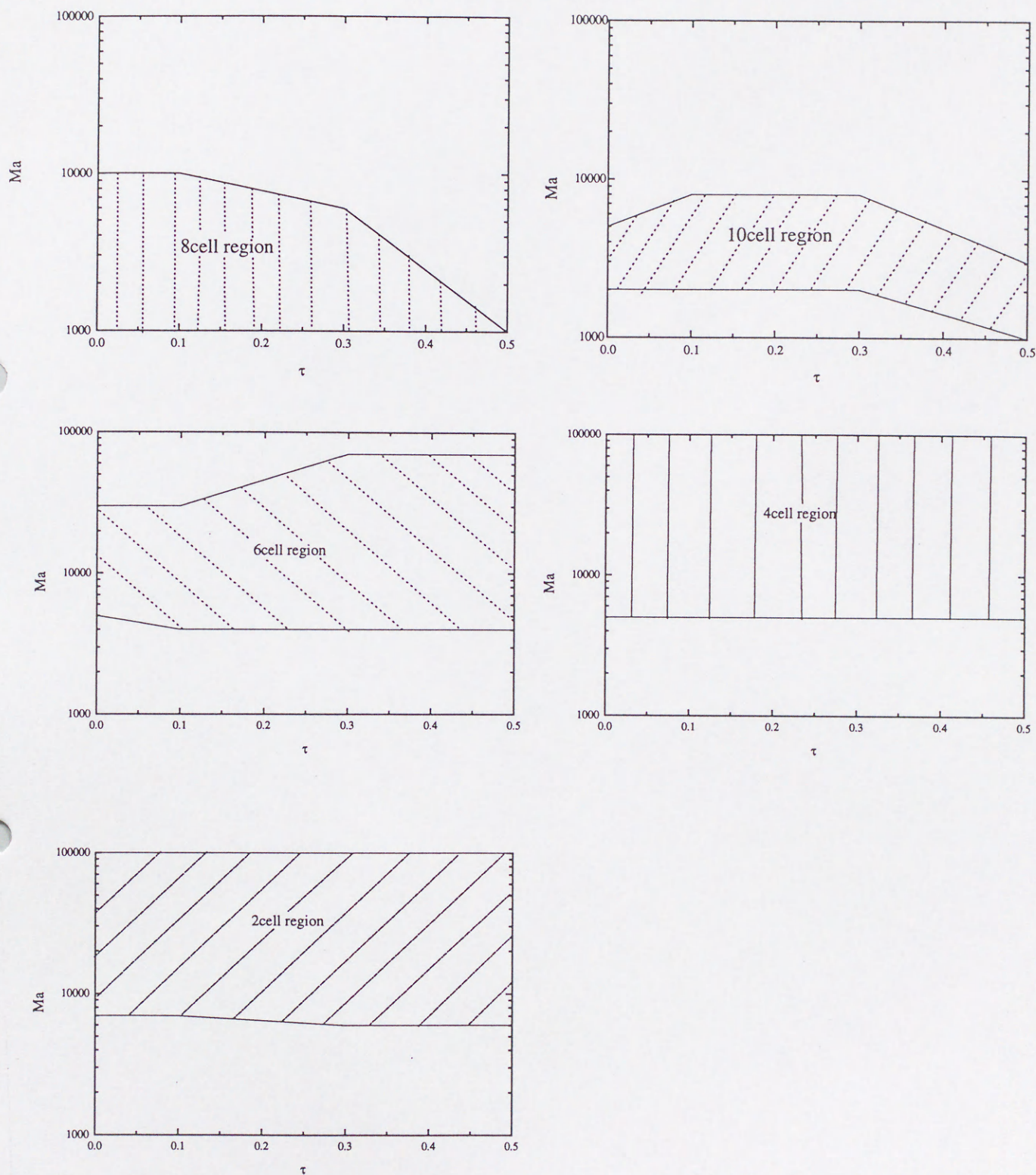


Fig.2-11 The range of stable solution for each convection cell pattern with and without inner heating

2.4 結言

下方加熱液膜層内のマランゴニ対流に及ぼす内部発熱の影響について数値計算を行った。その結果、内部発熱により液膜内部の温度が上昇し、その結果として実質的な液深が小さくなることがわかった。この効果によって内部発熱によりマランゴニ対流は抑制されることが、そして液膜層内に出現する対流セルが増加すること、が明らかになった。また内部発熱のパラメータである光学厚さ τ の違いにより液膜内に存在できる対流セルの数が増えることがわかり、個々のセルが存在する Ma 数の範囲についてのマップを作成することが出来た。

2.5 使用記号

A	=	aspect ratio	[-]
Bi	=	Biot number	[-]
C _p	=	specific heat	[J kg ⁻¹ K ⁻¹]
d	=	liquid depth	[m]
h	=	heat transfer coefficient	[W m ⁻² K ⁻¹]
I	=	intensity of incident radiation	[W m ⁻²]
k	=	thermal conductivity	[W m ⁻¹ K ⁻¹]
Ma	=	Marangoni number	[-]
Ma _c	=	critical Marangoni number	[-]
Nu	=	Nusselt number	[-]
N _s	=	non-dimensional source group	[-]
p	=	non-dimensional pressure = $p'd^2/\rho v^2$	[-]
p'	=	pressure	[Pa]
Pr	=	Prandtl number	[-]
Q	=	non-dimensional heat generation rate	[-]
Q'	=	heat generation rate	[W m ⁻³]
T	=	non-dimensional temperature = T'/T'_h	[-]
T'	=	temperature	[K]
T' _h	=	temperature on the bottom	[K]
t	=	non-dimensional time = $t'v/d^2$	[-]
t'	=	time	[s]
u	=	non-dimensional velocity (x direction) = $u'd/v$	[-]
u'	=	velocity (x direction)	[m s ⁻¹]
v	=	non-dimensional velocity (y direction) = $v'd/v$	[-]
v'	=	velocity (y direction)	[m s ⁻¹]
x	=	horizontal coordinate	[-]
x'	=	dimensional horizontal coordinate	[m]
y	=	vertical coordinate	[-]
y'	=	dimensional vertical coordinate	[m]

Greek symbols

γ	=	surface tension	$[\text{N m}^{-1}]$
μ	=	viscosity	$[\text{Pa s}]$
ν	=	kinematic viscosity	$[\text{m}^2 \text{s}^{-1}]$
ρ	=	density	$[\text{kg m}^{-3}]$
τ	=	optical thickness	$[-]$

Subscripts

a	free space
h	hot wall
top	free surface

Superscript

'	dimensional
---	-------------

2.6 参考文献

- 1) 今石宣之; 伝熱研究, 36, 1997, 23
- 2) J.R.A. Pearson; J. Fluid Mech., 4, 1958, 489
- 3) D.A. Nield; J. Fluid Mech., 19, 1964, 341
- 4) R. Kobayashi; Zeit. Angew. Mathe. Phys., 18, 1967, 845
- 5) G.I. Sivashinsky; Physica 4D, 1982, 341
- 6) O. Dupont, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 35, 1992, 3237
- 7) C.W. Lan, et al; J. Crystal Growth, 108, 1991, 351
- 8) A. Mühlbauer, et al; J. Crystal Growth, 64, 1983, 529
- 9) A. Mühlbauer, et al; J. Crystal Growth, 151, 1995, 66
- 10) 岡野泰則, et al; 日本結晶成長学会誌, 19, 1992, 283
- 11) Y. Okano, et al; J. Crystal Growth, 141, 1994, 383
- 12) Q. Xiao, et al; J. Crystal Growth, 139, 1994, 147
- 13) Y. Bayazitoglu, et al; J. Heat Transfer, 109, 1987, 717
- 14) T.T. Lam, et al; Acta. Mechanica, 17, 1988, 31
- 15) S.V. Patankar; "Numerical Heat Transfer and Fluid Flow", 1980

第3章

Floating Zone 系融液内対流に及ぼす諸因子の影響

3.1. 緒言

第3章においては、Floating Zone(FZ)法によるシリコン単結晶育成時の総合熱解析を行う。シリコン単結晶は、通常チョクラスキー(CZ)法によって育成が行われることが多い。しかしここで対象とする FZ 法によるシリコン単結晶育成は石英るつぼを使用する CZ 法とは異なり、きわめて低い酸素濃度の単結晶が得られること、また電氣的に活性な不純物をコントロール出来ること等の特長から、ディスクリットデバイスの基盤材料、あるいはサイリスタのようなパワーデバイスの材料育成法として用いられている¹⁾。また、最近ではこの方法を用い宇宙(微小重力環境)での結晶育成に関する研究も盛んに行われている²⁾³⁾⁴⁾。このように FZ 法による単結晶育成の重要性にもかかわらず、実際の育成においては既往の know-how の積み重ねによって経験的に操作条件を決めているのが実状である。また、一般的な結晶育成法であるチョクラスキー法に関する計算機シミュレーションと比べると大きく遅れているのが現状である¹⁾⁵⁾。

本章においては、シリコン単結晶育成時の FZ 炉内の熱移動現象について数値計算を行った。加熱方法としては輻射加熱と高周波加熱の二通りを考え、境界適合座標を用いた総合熱解析プログラムの作成を行った。融液内の対流としては自然対流、マランゴニ対流、高周波加熱の場合は MHD 対流を考慮した計算を行った。なお、結晶及び多結晶体の回転に伴う強制対流については今回取り扱わなかった。そして、これらの計算結果を基に実際の育成時の融液内対流に及ぼす諸因子の影響を詳細に検討した。すなわち、輻射加熱の場合には操作因子として考えられる周囲温度と結晶育成速度の変化による融液内対流の変化について明らかにした。一方高周波加熱の場合は、融液内の対流が MHD 対流支配なのかマランゴニ対流支配なのかという基本的なことについてもまだ明らかになっていない⁶⁾⁷⁾⁸⁾ことを考慮し、MHD 対流についての計算を行い、この点について考察した。

3.2 解析方法

3.2.1 FZ 炉のモデル化

FZ 炉に関し輻射加熱と高周波加熱の2つの加熱法を Fig.3-1 のようにモデル化する。FZ

法による単結晶育成系は、多結晶体(Feed)、結晶(Crystal)およびこれらの間に外部からの加熱により形成された融液(Melt)部分からなる。ここでは、多結晶体と結晶の半径は同じで 5mm、多結晶体と融液と結晶部分をあわせた全体の長さは 41cm とした。二種類の加熱方法のうち、輻射加熱の場合は、ガウス分布の周囲温度を設定することによりモデル化した⁹⁾¹⁰⁾¹¹⁾。すなわち、周囲温度の分布は

$$T_a(z) = (T_p - T_\infty) \exp \left[- \left\{ \frac{(z - 0.5z_1)}{a} \right\}^2 \right] + T_\infty \quad (3.1)$$

と表すことが出来る。ここで T_p はピーク温度、 T_∞ は遠方における温度であり、 a は分布幅、 z_1 は全体の長さである。本解析では、 $T_\infty = 373\text{K}$, $a = 1\text{cm}$ とした。

一方高周波加熱の場合は、コイルに高周波電流を流すことにより発生する電磁場を、マクスウエル方程式から求め、これに基づき多結晶体、融液及び結晶に発生する誘導電流から発熱量分布を求める。なお、この詳細については 3.2.3 に示す。

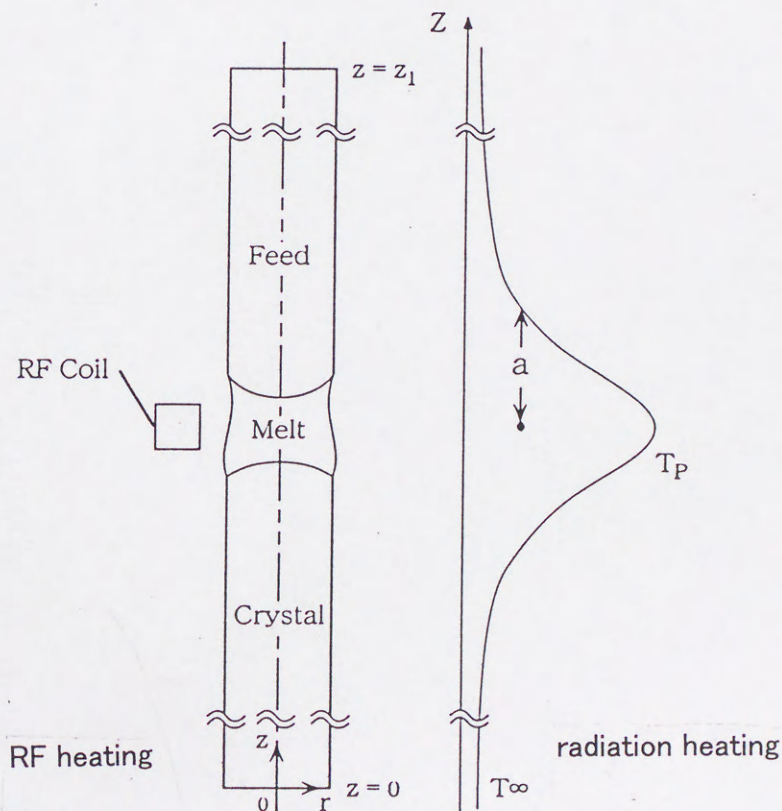


Fig.3-1 Schematic diagram of floating zone silicone crystal growth system

3.2.2 流れ場及び温度場に関する基礎式及び境界条件

解析に当たって以下の仮定を用いる。

- ・系は軸対称、定常。
- ・融液はニュートン流体で、流れは層流。
- ・熱損失は輻射及び対流伝熱による。
- ・融液/単結晶/ガス 3 相接触線における接触角を固定し、 11° とする。
- ・固液界面形状は融点の等温線とする。

以上の仮定のもと、Fig.3-1 のような系の融液内の流れ場及び温度場に関する結晶及び多結晶の半径 5mm、シリコンの融点 1683K、融液の動粘度等の物性値を用いて無次元した基礎式は次の通りである。

連続式

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ru) + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \quad (3.1)$$

運動方程式

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ruu) + \frac{\partial}{\partial z} (uw) = -\frac{\partial P}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial u}{\partial z} \right) - \frac{u}{r^2} + F_r \quad (3.2)$$

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ruw) + \frac{\partial}{\partial z} (ww) = -\frac{\partial P}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial w}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial w}{\partial z} \right) - Gr(1-T) + F_z \quad (3.3)$$

F_r, F_z はそれぞれ r 方向 z 方向に働く重力以外の体積力であり、輻射加熱のときは 0 であるが、高周波加熱の場合にはローレンツ力である。

エネルギー方程式

$$Pr \left\{ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ruT) + \frac{\partial}{\partial z} (wT) \right\} = \left\{ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right\} + Q \quad (3.4)$$

Q は無次元発熱量であり、高周波加熱の場合にはこの項に誘導電流によるジュール熱を考慮する必要がある。

なお結晶及び多結晶部分についての温度場に関する基礎式は次式である。

エネルギー方程式

$$Pe_i \frac{\partial T_i}{\partial z} = \kappa_i \left\{ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T_i}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 T_i}{\partial z^2} \right\} + Q \quad (i = s, f) \quad (3.5)$$

無次元境界条件は、以下のように与えられる。

融液自由表面で

$$\boldsymbol{\tau} : \mathbf{n}\mathbf{t} - \text{Ma} \nabla T \cdot \mathbf{t} = 0 \quad (3.6)$$

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (3.7)$$

$$-\nabla T_m \cdot \mathbf{n} = \text{Bi}(T_m - T_a) + R_m(T_m^4 - T_a^4) \quad (3.8)$$

結晶/融液および融液/多結晶界面で

$$u = w = 0 \quad (3.9)$$

$$T_m = 1 \quad (3.10)$$

$$\nabla T_m \cdot \mathbf{n} - \kappa_i \nabla T_i \cdot \mathbf{n} = \pm \text{Pe} \text{ St}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{e}_z) \quad (i = s, f) \quad (3.11)$$

中心軸で

$$u = 0 \quad (3.12)$$

$$\frac{\partial w}{\partial r} = 0 \quad (3.13)$$

$$\frac{\partial T_i}{\partial r} = 0 \quad (i = s, m, f) \quad (3.14)$$

結晶、多結晶表面で

$$-\kappa_i \nabla T_i \cdot \mathbf{n} = \text{Bi}(T_i - T_a) + R_i(T_i^4 - T_a^4) \quad (i = s, f) \quad (3.15)$$

ここで s は結晶、 f は多結晶、 m は融液を意味している。なお、基礎式及び境界条件において得られた各無次元数は以下のように定義される。

$$\text{Gr: グラスホフ数} \quad \text{Gr} = \frac{g \beta T'_{\text{melt}} r_{\text{ref}}^3}{\nu^2} \quad \text{Ma: マランゴニ数} \quad \text{Ma} = \frac{(-d\gamma/dT) \Gamma'_{\text{melt}} r_{\text{ref}}}{\rho \nu^2}$$

$$\text{Pr: プラントル数} \quad \text{Pr} = \frac{\mu c_p}{k_m} \quad \text{Bi: ビオー数} \quad \text{Bi} = \frac{h r'_{\text{ref}}}{k_m}$$

$$\text{Pe: ペクレ数} \quad \text{Pe} = \frac{\rho c_p V r'_{\text{ref}}}{k_{\text{melt}}} \quad \text{R: ラディエーション数} \quad \text{R} = \frac{r'_{\text{ref}} \varepsilon \sigma_0 T_{\text{melt}}^3}{k_m}$$

$$\text{St: ステファン数} \quad \text{St} = \frac{\Delta H_f}{c_p T'_{\text{melt}}} \quad \kappa: \text{融液の熱伝導率との比} \quad \kappa = \frac{k_i}{k_m}$$

また総合熱解析を行う場合、融液自由表面形状は未知数の一つとして計算する必要がある。

そのための基礎式は

修正 Young-Laplace 式

$$2H = \text{Bo}_g z + \frac{1}{2} \text{Bo}_e B_s^2 + \lambda \quad (3.16)$$

であり、拘束条件、境界条件は以下のように与えられる。

$$\left[\frac{df}{dz} \right]_{z=h_L} = \tan \psi \quad (3.17)$$

$f=1$ at 固液界面

ここで、 λ は参照圧力、 ψ は結晶/融液の接触角であり、 $r=f(z)$ は自由表面形状を、 B_s は融液自由表面上の接線方向の磁束密度を表す。なお、 $2H$ は表面の曲率を表しており次式で与えることが出来る。

$$2H = \frac{f_{zz}}{(1+f_z^2)^{3/2}} - \frac{1}{f(1+f_z^2)^{1/2}} \quad (3.18)$$

ボンド数及び電磁ボンド数は

$$Bo_g: \text{ボンド数} \quad Bo_g = \frac{\rho g r_{ref}'^2}{\gamma} \quad Bo_e: \text{電磁ボンド数} \quad Bo_e = \frac{\mu_0 J_c'^2 r_{ref}'^3}{\gamma}$$

と定義される無次元数である。ここで、 J_c はコイルの電流密度を表す。なお 3.3.2 以降の計算においては融液長が短いため、融液自由表面に働く電磁力は小さいものと考えたため、電磁ボンド数を 0 として計算した¹²⁾。なお電磁ボンド数を考慮した計算については Appendix 3- I に示す。

同様に固液界面形状も未知数として求める必要があるが、これについては固液界面の温度が融点であるという条件、すなわち式(3.10)により求める¹³⁾。

3.2.3 電磁場に関する基礎式及び境界条件

高周波加熱では RF コイルの高周波磁場により導体内（多結晶、融液、単結晶）に誘導電流が発生し、これに基づくジュール熱により多結晶の一部が加熱溶融される。従って高周波加熱による FZ 炉の解析を行うためには、まず系内の電磁場を求める必要があり、その基礎式はマクスウエルの方程式である。

ここで系は軸対称、また磁束密度や電流密度等の物理量が交流定常状態であると仮定する。これらの仮定の下、マクスウエルの方程式に $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$ で定義される磁気ベクトルポテンシャル \mathbf{A} を導入する。コイルにおける強制電流密度 J_c 及び真空の透磁率を用いて無次元化した基礎式を以下に示す。

導体部分(結晶、多結晶、融液)は

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial A_i}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 A_i}{\partial z^2} - \frac{A_i}{r^2} = j N_A \alpha_i A_i \quad i = s, m, f \quad (3.19)$$

コイル部分は

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial A_c}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 A_c}{\partial z^2} - \frac{A_c}{r^2} = -1 \quad (3.20)$$

自由空間では

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial A_a}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 A_a}{\partial z^2} - \frac{A_a}{r^2} = 0 \quad (3.21)$$

となる。ここで、 A はベクトルポテンシャル A の周方向成分である。なおコイル部分においては誘導電流の発生を無視した。また、 $j = \sqrt{-1}$ である。

境界条件は

中心軸及び自由空間遠方領域で

$$A=0 \quad (3.22)$$

である。ここで本来 $A=0$ となるのは無限遠方である。しかし、有限差分法あるいは有限要素法を数値解析法として用いる場合は、有限領域に境界を設定しなければならない。本章においては、コイルを無次元長さで 1×1 の大きさのものとし、その位置を r 座標が $1.5 \sim 2.5$ 、 z 座標が $40.5 \sim 41.5$ とした。そして境界を r 方向に中心からの距離 40、 z 方向に結晶及び多結晶端からそれぞれ距離 0.5 離れた位置に設定し計算を行った。ここで α は融液の電気伝導度を基準とした電気伝導度の比であり、 N_A は

$$N_A = \mu_0 \omega \sigma_{\text{ref}} r_{\text{ref}} \quad (3.23)$$

で定義される無次元数である。

なお、輻射加熱、高周波加熱双方の計算で用いた物性値を Table 3-1 に示す。

3.2.4 座標変換

この系の計算においては固液界面及び融液自由表面が未知数であり、条件によってこれら界面は大きく変形する。これは典型的な移動境界問題であり、これを正確に計算する方法として有限要素法あるいは境界適合座標を用いる有限差分法がある。有限要素法は、特に流れを計算する場合、離散化後のマトリックスが大きくなり計算時間やメモリーの点で不利である。そのため本研究は後者の境界適合座標を用いて解析を行った。Fig. 3-2 のように曲線を含む一般座標系を直交座標である計算座標系に写像する。 (r, z) 座標を (ξ, η) 座標へと変換するに当たっては、以下に示すメトリック関係式を用いる。

$$\begin{aligned} \xi_r &= z_\eta / J, \xi_z = -r_\eta / J, \eta_r = -z_\xi / J, \eta_z = r_\xi / J, J = r_\xi z_\eta - r_\eta z_\xi \\ g_{11} &= r_\eta^2 + z_\eta^2, g_{12} = r_\xi r_\eta + z_\xi z_\eta, g_{22} = r_\xi^2 + z_\xi^2 \end{aligned} \quad (3.24)$$

式(3.26)を連続式に適用すると、

$$\frac{1}{r} \frac{1}{J} \left\{ \frac{\partial}{\partial \xi} (rU) + \frac{\partial}{\partial \eta} (rW) \right\} = 0 \quad (3.25)$$

となる。ここで、反変速度成分 U, W は次のように定義される。

$$U = z_{\eta} u - r_{\eta} w, W = -z_{\xi} u + r_{\xi} w \quad (3.26)$$

また速度及び温度場、さらには電磁場の基礎式は以下のように与えられる。

運動方程式

(r 方向)

$$\begin{aligned} \frac{1}{r} \frac{1}{J} \left\{ \frac{\partial}{\partial \xi} (rUu) + \frac{\partial}{\partial \eta} (rWu) \right\} &= \frac{1}{J} (-z_{\eta} P_{\xi} + z_{\xi} P_{\eta}) \\ &+ \frac{1}{r} \frac{1}{J} \left[\frac{\partial}{\partial \xi} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{11} \frac{\partial u}{\partial \xi} - g_{12} \frac{\partial u}{\partial \eta} \right) \right\} + \frac{\partial}{\partial \eta} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{22} \frac{\partial u}{\partial \eta} - g_{12} \frac{\partial u}{\partial \xi} \right) \right\} \right] - \frac{u}{r^2} + F_r \end{aligned} \quad (3.27)$$

(z 方向)

$$\begin{aligned} \frac{1}{r} \frac{1}{J} \left\{ \frac{\partial}{\partial \xi} (rUw) + \frac{\partial}{\partial \eta} (rWw) \right\} &= \frac{1}{J} (r_{\eta} P_{\xi} - r_{\xi} P_{\eta}) \\ &+ \frac{1}{r} \frac{1}{J} \left[\frac{\partial}{\partial \xi} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{11} \frac{\partial w}{\partial \xi} - g_{12} \frac{\partial w}{\partial \eta} \right) \right\} + \frac{\partial}{\partial \eta} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{22} \frac{\partial w}{\partial \eta} - g_{12} \frac{\partial w}{\partial \xi} \right) \right\} \right] - Gr(1-T) + F_r \end{aligned} \quad (3.28)$$

エネルギー方程式(結晶、多結晶、融液)

$$\begin{aligned} Pr_i \left[\frac{1}{r} \frac{1}{J} \left\{ \frac{\partial}{\partial \xi} (rUT_i) + \frac{\partial}{\partial \eta} (rWT_i) \right\} \right] &= \\ \kappa_i \frac{1}{r} \frac{1}{J} \left[\frac{\partial}{\partial \xi} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{11} \frac{\partial T_i}{\partial \xi} - g_{12} \frac{\partial T_i}{\partial \eta} \right) \right\} + \frac{\partial}{\partial \eta} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{22} \frac{\partial T_i}{\partial \eta} - g_{12} \frac{\partial T_i}{\partial \xi} \right) \right\} \right] &+ Q \end{aligned} \quad (3.29)$$

($i=s, m, f$)

導体部分(融液、結晶、多結晶)

$$\frac{1}{r} \frac{1}{J} \frac{\partial}{\partial \xi} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{11} \frac{\partial A_i}{\partial \xi} - g_{12} \frac{\partial A_i}{\partial \eta} \right) \right\} + \frac{1}{r} \frac{1}{J} \frac{\partial}{\partial \eta} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{22} \frac{\partial A_i}{\partial \eta} - g_{12} \frac{\partial A_i}{\partial \xi} \right) \right\} \frac{\partial^2 A_i}{\partial z^2} - \frac{A_i}{r^2} = jN_A \alpha_i A_i \quad (3.30)$$

($i = s, m, f$)

高周波コイル部分

$$\frac{1}{r} \frac{1}{J} \frac{\partial}{\partial \xi} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{11} \frac{\partial A_c}{\partial \xi} - g_{12} \frac{\partial A_c}{\partial \eta} \right) \right\} + \frac{1}{r} \frac{1}{J} \frac{\partial}{\partial \eta} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{22} \frac{\partial A_c}{\partial \eta} - g_{12} \frac{\partial A_c}{\partial \xi} \right) \right\} \frac{\partial^2 A_c}{\partial z^2} - \frac{A_c}{r^2} = -1 \quad (3.31)$$

自由空間

$$\frac{1}{r} \frac{1}{J} \frac{\partial}{\partial \xi} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{11} \frac{\partial A_a}{\partial \xi} - g_{12} \frac{\partial A_a}{\partial \eta} \right) \right\} + \frac{1}{r} \frac{1}{J} \frac{\partial}{\partial \eta} \left\{ \frac{r}{J} \left(g_{22} \frac{\partial A_a}{\partial \eta} - g_{12} \frac{\partial A_a}{\partial \xi} \right) \right\} \frac{\partial^2 A_a}{\partial z^2} - \frac{A_a}{r^2} = 0 \quad (3.32)$$

これらの式を解くことにより電磁場、温度場、流れ場、界面形状を求める¹³⁾。

数値解析法としては、コントロールボリューム法に基づく有限差分法を使用し、速度場については SIMPLE 法を、対流項の解法としてはべき乗法を用いた¹⁴⁾。なお、メッシュ数は融液部分に関して 50×75、多結晶、結晶部分に関しては 50×60 とした。

温度、流速、界面形状についての残差が 0.1% になった時点で収束と判断した。

Table 3-1 Physical properties.

Melting point	T_{melt}	1683 K
Heat of fusion	ΔH_f	$1.803 \times 10^6 \text{ J kg}^{-1}$
Heat transfer coefficient	h	$11 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$
Thermal conductivity of feed and crystal	$k_{\text{f or s}}$	$22 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$
Thermal conductivity of melt	$k_{\text{m or ref}}$	$64 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$
Specific heat of feed and crystal	$c_{\text{p f or s}}$	$1038 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$
Specific heat of melt	$c_{\text{p m}}$	$1059 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$
Emissivity of feed and crystal	$\epsilon_{\text{f or s}}$	0.7
Emissivity of melt	ϵ_{m}	0.3
Coefficient of thermal expansion	β	$1.0 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$
Surface tension coefficient	$d\gamma/dT$	$-0.43 \times 10^{-3} \text{ N m}^{-1} \text{ K}^{-1}$
Surface tension	γ	0.72 N m^{-1}
Kinematic viscosity	ν	$2.75 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$
Density of feed and crystal	$\rho_{\text{f or s}}$	$2.33 \times 10^3 \text{ kg m}^{-3}$
Density of melt	$\rho_{\text{m or ref}}$	$2.55 \times 10^3 \text{ kg m}^{-3}$
Electric conductivity of feed and crystal	$\sigma_{\text{f or s}}$	$4.3 \times 10^4 \text{ S m}^{-1}$
Electric conductivity of melt	$\sigma_{\text{m or ref}}$	$1.2 \times 10^6 \text{ S m}^{-1}$
Gravitational acceleration	g	9.81 m s^{-2}
magnetic permeability in free space	μ_0	$4\pi \times 10^{-7} \text{ H m}^{-1}$
Stefan-Boltzmann's constant	σ_0	$5.67 \times 10^{-8} \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-4}$
Contact angle	ψ	0.192 rad

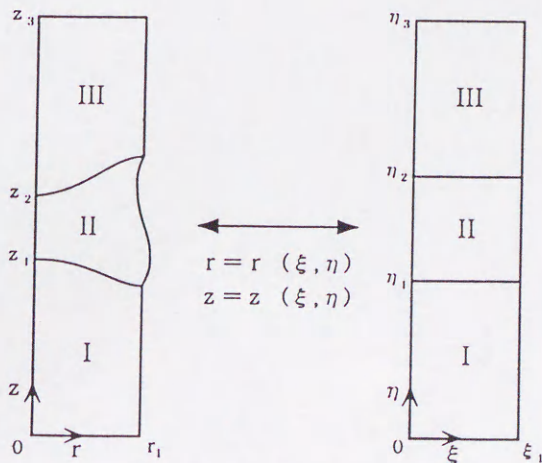


Fig. 3-2 Numerical simulation using the boundary fitted coordinates.

3.3 計算結果

3.3.1 輻射加熱 FZ 炉

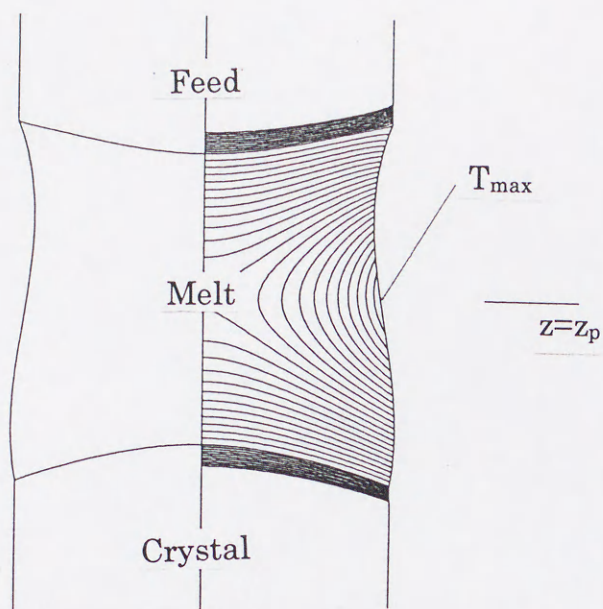
3.3.1.1 融液内対流と温度場、界面形状

本研究では、計算対象として半径 5mm の多結晶棒を加熱溶融して同半径のシリコン単結晶を FZ 法により育成する場合を考えた。このとき、自然対流の強さを表す無次元数であるグラスホフ数は $Gr=2.74 \times 10^6$ 、マランゴニ対流の強さを表す無次元数であるマランゴニ数は $Ma=1.88 \times 10^7$ となる。まずこの系における対流の影響をみるために、周囲温度の最大値を $T_p=1.5[-]$ とし、結晶育成速度を 0 ($Pe=0$) とした場合における $Ma=Gr=0$ の時の温度分布と、 $Gr=2.74 \times 10^6$, $Ma=1.88 \times 10^7$ の時の温度分布と流れ関数の分布を Fig.3-3 に示す。なお、図中の右にある線は T_p の z 方向の位置 $z=z_p$ を示している。 $Ma=Gr=0$ の場合には、融液内の温度のもっとも高い部分は T_p の位置と同じ高さにある。しかしながら、 $Gr=2.74 \times 10^6$, $Ma=1.88 \times 10^7$ の場合に関しては一対の対流セルが発生し、上部にある対流セルが下部に比べ大きく、融液内の温度の最高点が T_p の位置よりもやや上の方に移動することがわかる。またこの対流構造に起因して、温度分布ひいては融液/結晶界面形状も大きく変形していることがわかる。ところでシリコンのプラントル数は 1.15×10^{-2} となっており溶融金属と同じようになり小さい。そのためこれまでの研究では融液内を熱伝導支配と仮定した計算もあった¹²⁾。しかし、この計算で明らかのように対流の影響は強く、対流を無視した計算では融液内の温度分布、界面形状等を正確に扱うことが出来ないことが明らかになった。

3.3.1.2 自然対流とマランゴニ対流の影響

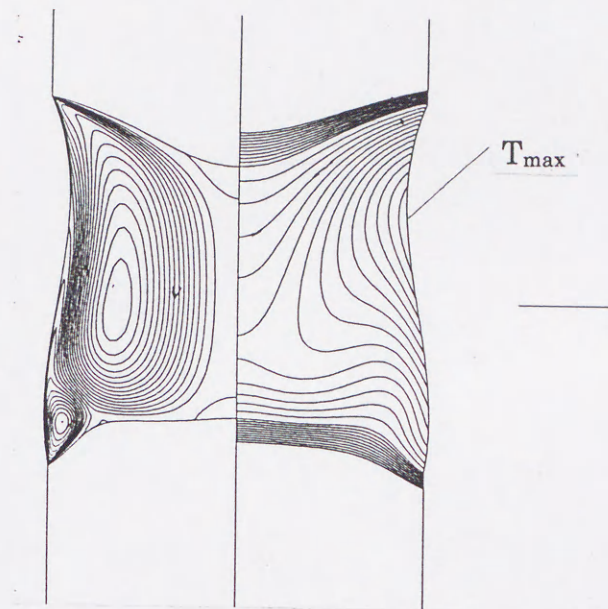
通常、地上においては FZ 融液内には自然対流とマランゴニ対流が共存している。Fig.3-3 の結果は、この共存対流を示しているが、この結果からは FZ 融液内対流において、自然対流支配であるかマランゴニ対流支配であるかについての結論は得られない。これを明確にするために、 $Gr=2.74 \times 10^6$, $Ma=0$ と $Gr=0$, $Ma=1.88 \times 10^7$ の結果を比較を Fig.3-4 に示す。この図からわかるとおり自然対流のみを考慮した場合は融液内の対流は弱く温度場にほとんど影響を与えていないことがわかる。ところがマランゴニ対流のみの場合は Fig.3-3 と

比較してもわかるとおり、共存対流の場合とほぼ変わらない結果になっている。このことから本研究の条件すなわち半径 5mm 程度の FZ 単結晶育成においては、融液内対流はマランゴニ対流が支配的であることが明らかとなった。さらに Ma 数がどの程度の大きさになると融液内で支配的になるか、あるいは Fig.3-3,3-4 で示すように、一対の対流セルが上下非対称となるかを明らかにするために、 $Gr=0$ として Ma を変化させた計算結果について Fig.3-5 に示す。この図からまず $Ma=1.0 \times 10^3$ では流れの影響はほとんどみられないことがわかる。 $Ma=1.0 \times 10^5$ になるとやや対流の大きさは大きくなるが温度場や固液界面に及ぼす影響はあまりない。 $Ma=1.0 \times 10^6$ において、融液内対流は上下非対称性がはっきりと現れる。このとき温度場や界面形状にも流れの影響がわずかではあるが観察される。例えば、対流の影響により融液内温度の最高点は T_p の位置よりやや上となり、これに伴わずかではあるが融液/多結晶界面も変形する。そして $Ma=1.0 \times 10^7$ ではマランゴニ対流の影響が顕著となることがわかる。



$$T_{\max}=1.0228, \phi_{\max}=\phi_{\min}=0$$

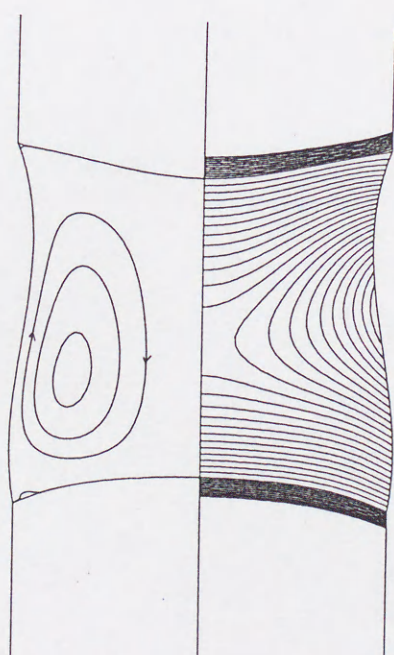
$$\text{Gr}=0, \text{Ma}=0$$



$$T_{\max}=1.0139, \phi_{\max}=158, \phi_{\min}=-100$$

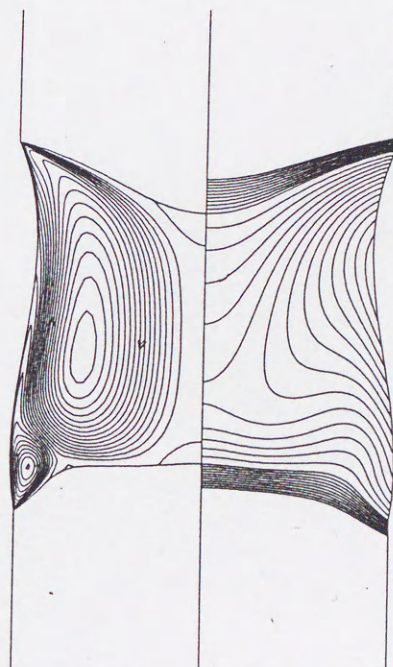
$$\text{Gr}=2.74 \times 10^6, \text{Ma}=1.88 \times 10^7$$

Fig. 3-3 Stream lines and isotherms in the melt zone when $T_p=1.5$ and $\text{Pe}=0$.



$$T_{\max}=1.0229, \phi_{\max}=33.0, \phi_{\min}=0$$

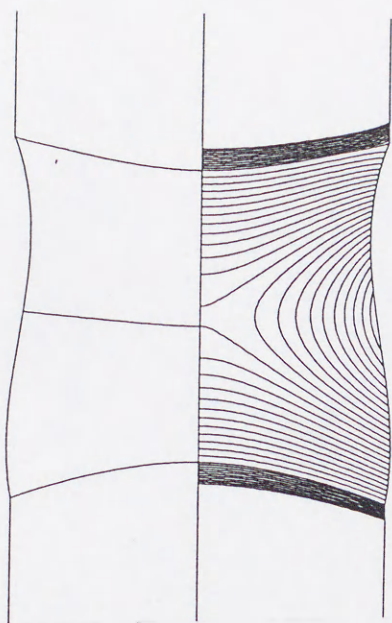
$$\text{Gr}=2.74 \times 10^6, \text{Ma}=0$$



$$T_{\max}=1.0139, \phi_{\max}=156, \phi_{\min}=-101$$

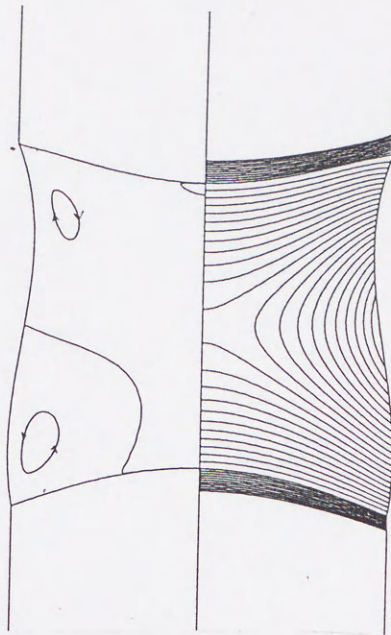
$$\text{Gr}=0, \text{Ma}=1.88 \times 10^7$$

Fig. 3-4 Effects of Gr and Ma on the stream lines and isotherms in the melt zone when $T_p=1.5$ and $\text{Pe}=0$.



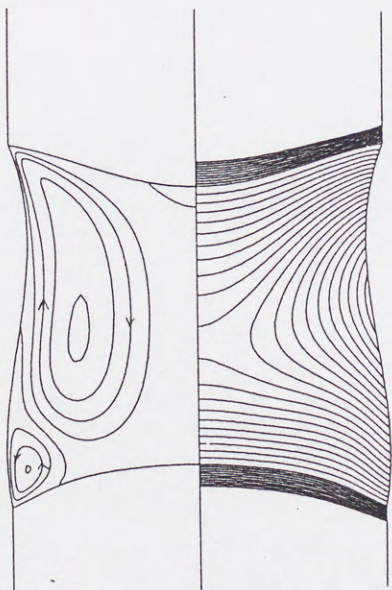
$$T_{\max}=1.0228, \phi_{\max}=0.20, \phi_{\min}=-0.25$$

$$Ma=1.0 \times 10^3$$



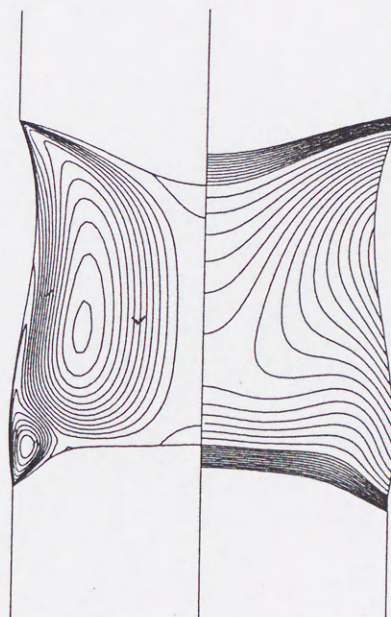
$$T_{\max}=1.0221, \phi_{\max}=11.0, \phi_{\min}=-12.6$$

$$Ma=1.0 \times 10^5$$



$$T_{\max}=1.0207, \phi_{\max}=41.4, \phi_{\min}=-30.4$$

$$Ma=1.0 \times 10^6$$



$$T_{\max}=1.0157, \phi_{\max}=123, \phi_{\min}=-79.1$$

$$Ma=1.0 \times 10^7$$

Fig. 3-5 Effect of Ma on the stream lines and isotherms in the melt zone
when $T_p=1.5$ and $Pe=0$.

3.3.1.2 周囲温度の影響

これまでの融液内対流に及ぼす Ma 数あるいは Gr 数の影響について検討してきた。しかし、実際の結晶育成においては Ma 数あるいは Gr 数は現実的な操作パラメータではない。実際の操作パラメータとして周囲温度あるいは育成速度がある。そこで、周囲温度の最大値である T_p を変化させた場合の影響について Fig.3-6 に示す。融液内には上下非対称の一对の渦が生じ、対流の構造は変わらないものの、 T_p が大きくなると融液部が長くなり、融液内の T_{max} も大きくなる。またこれを反映し、融液内の対流の強度も大きくかわる。これらの結果から融液長は T_p に対して非常に敏感であることが示された。このような計算を行うと、輻射加熱による安定操作範囲を計算により求めることが出来る。

3.3.1.4 結晶育成速度の影響

実際の結晶製造プロセスにおいて、結晶育成速度は生産効率を考える上で重要である。そのため結晶育成速度の融液内の対流や、界面形状に及ぼす影響を検討することは重要である。Fig.3-7 に $T_p=1.5$ において無次元結晶育成速度である Pe の変化による界面形状と融液内の対流の変化について示す。なお $Pe=2.0 \times 10^{-2}$ は実際の結晶育成速度にすると 40cm/h となる。この図から結晶育成速度が大きくなると、融液/多結晶界面は融液に対してより凸になり、この界面の結晶側の温度勾配は小さく融液側では大きくなることがわかる。これに対して、融液/結晶界面は Pe 数の増加に伴いより平坦になり、融液/結晶内温度勾配の傾向も逆になる。また、周囲温度の最大点の位置に対する融液の相対位置は、 Pe 数の増加により下降する。これらの結果はいずれも多結晶/融液界面では融解による吸熱、単結晶/融液界面では、凝固に伴う潜熱の発生があることに起因する。いま、融液/多結晶界面の変形を ΔH_U 、融液/結晶界面の変形を ΔH_L としてそれぞれの ΔH に及ぼす Pe 数の影響を Fig.3-8 に示す。Fig.3-7 及び Fig.3-8 からわかるとおり、 Pe が大きくなると融液/多結晶界面は融液に対して凸つまり ΔH_U は大きくなり、逆に融液/結晶界面は平坦、つまり ΔH_L は小さくなっていくことがわかる。

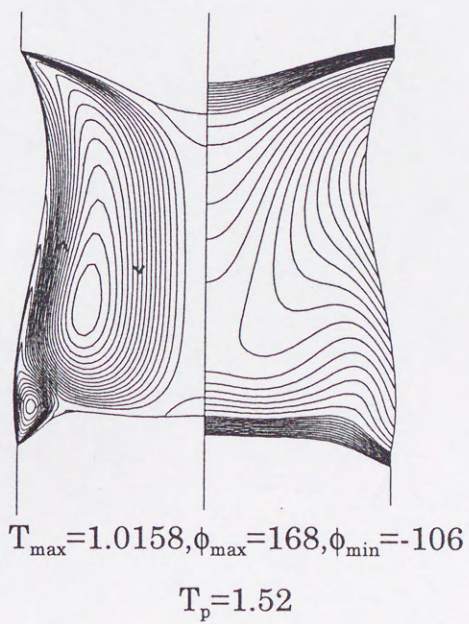
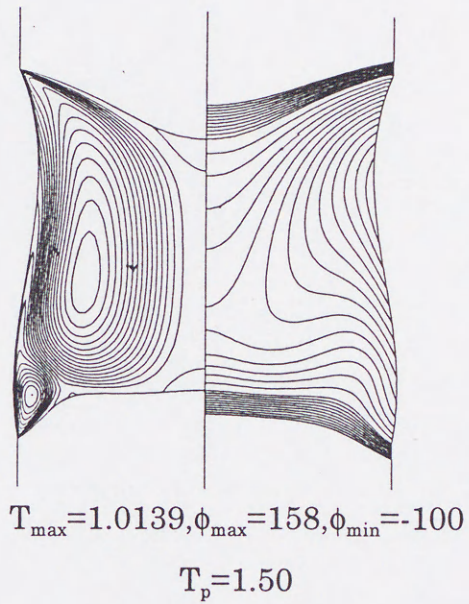
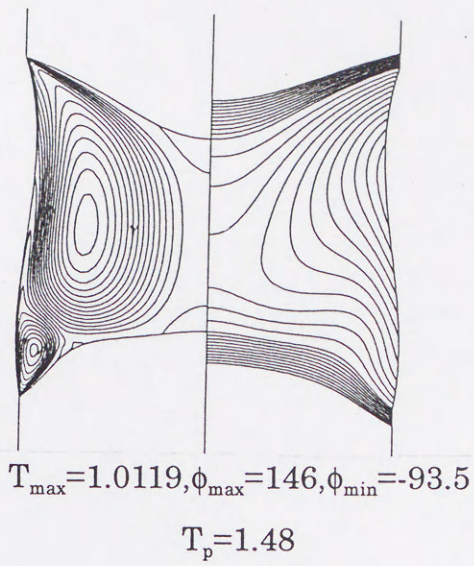
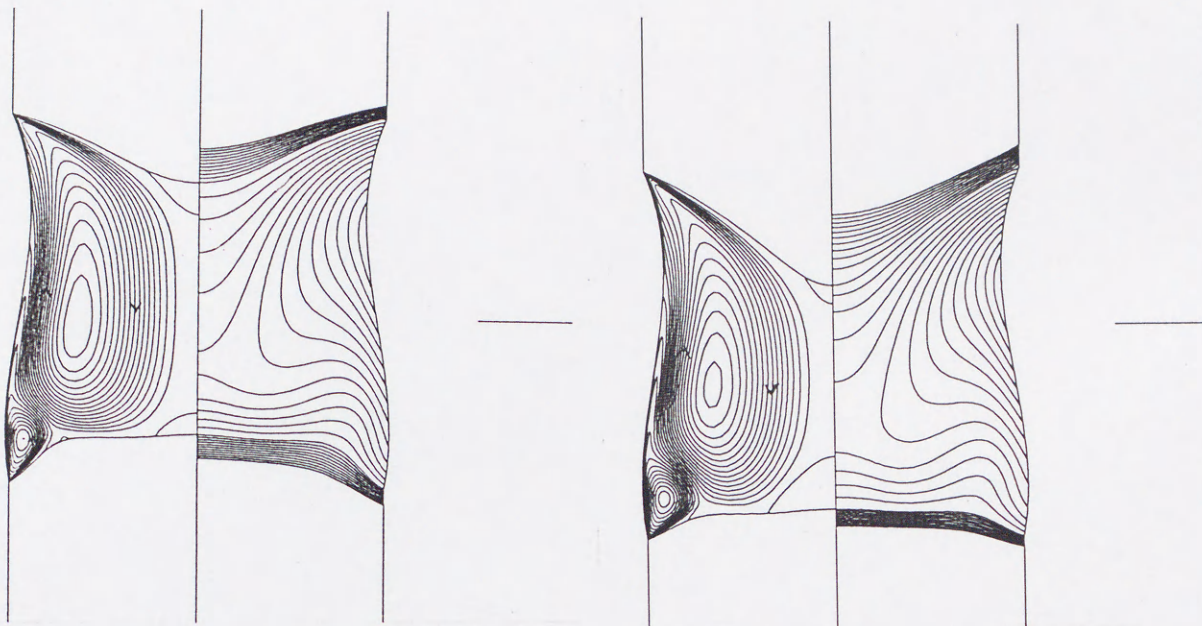


Fig. 3-6 Effect of T_p on the stream lines and isotherms in the melt zone when $Pe=0$.



$$T_{\max}=1.0139, \phi_{\max}=158, \phi_{\min}=-100$$

$$Pe=0$$

$$T_{\max}=1.0140, \phi_{\max}=154, \phi_{\min}=-116$$

$$Pe=2.0 \times 10^{-2}$$

Fig. 3-7 Effect of Pe on stream lines and isotherms in the melt zone when $T_p=1.5$.

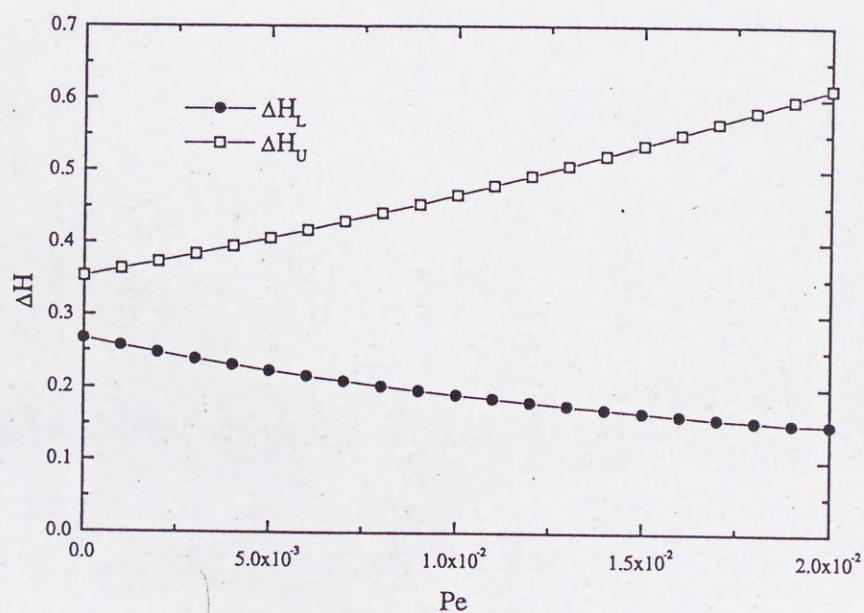


Fig. 3-8 Effects of the crystal growth rate on the melt/feed and melt/crystal interface shape when $T_p=1.5$.

3.3.2 高周波加熱 FZ 炉

3.3.2.1 ローレンツ力及び発熱項

高周波加熱 FZ 炉の解析においては運動方程式とエネルギー方程式に式(3.27)～(3.39)のようにそれぞれローレンツ力の項と発熱項が加わる。それらの項は次式で定義される。

$$\text{ローレンツ力} \quad \mathbf{F} = \frac{1}{2} N_F (\mathbf{J} \times \mathbf{B}^*) \quad (3.33)$$

$$\text{発熱項} \quad Q = \frac{1}{2} N_Q (\mathbf{J} \cdot \mathbf{J}^*) \quad (3.34)$$

なお、上付の*は共役複素数を示している。いま、式(3.33)(3.34)をコイルの強制電流密度 J_c を用いて無次元化すると、ベクトルポテンシャルと電流密度の実数部分と虚数部分の関係は

$$A^R = -\frac{1}{\alpha N_A} J^I \quad A^I = \frac{1}{\alpha N_A} J^R \quad (3.35)$$

と表すことが出来る。

ここで N_Q は

$$N_Q = \frac{\sigma \omega^2 \mu_0^2 J_c'^2 r_{\text{ref}}'^6}{\rho c_p v T_{\text{melt}}'} \quad (3.36)$$

と表すことが出来る。

電流密度ベクトルは円筒座標系(r, θ, z)において

$$\mathbf{J} = (0, J, 0) \quad (3.37)$$

となり、磁束密度ベクトルの共役複素数は

$$\mathbf{B}^* = \nabla \times \mathbf{A}^* = \left(-\frac{\partial}{\partial z} A^*, 0, \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r A^*) \right) \quad (3.38)$$

となる。結果として、ローレンツ力は

$$\mathbf{F} = \left(\frac{1}{2} \left\{ J^R \left(\frac{1}{r} A^R + \frac{\partial A^R}{\partial r} \right) + J^I \left(\frac{1}{r} A^I + \frac{\partial A^I}{\partial r} \right) \right\}, 0, \frac{1}{2} \left\{ J^R \frac{\partial A^R}{\partial z} + J^I \frac{\partial A^I}{\partial z} \right\} \right) \quad (3.39)$$

となる。式(3.33)及び式(3.39)から無次元数 N_F は

$$N_F = \frac{J_c'^2 \mu_0^2 r_{\text{ref}}'^4}{\rho v^2} \quad (3.40)$$

となる。

3.3.2.2 MHD 対流の影響

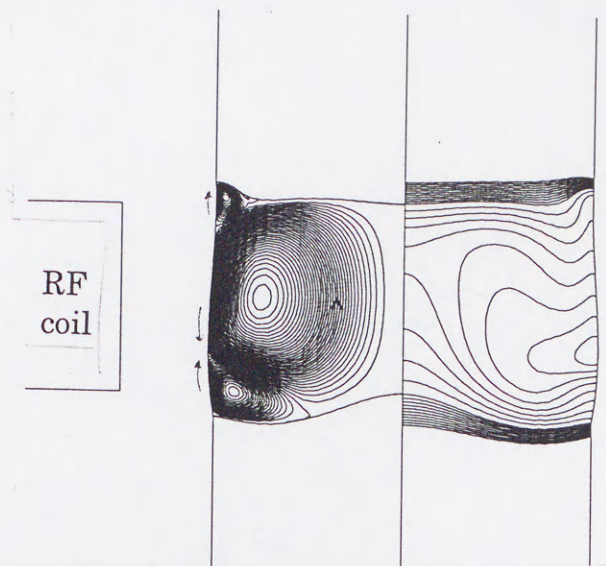
ここでは、高周波加熱 FZ 炉により半径 5mm のシリコン単結晶を育成する場合の融液内対流に及ぼす MHD 対流の影響について検討する。コイル電流密度が $1.4 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ で周波数が 1.4MHz のときの MHD 対流のみを考慮した計算結果を Fig.3-9 に示す。このとき $N_Q = 3.89 \times 10^5$, $N_A = 3.32 \times 10^2$, $N_F = 8.44 \times 10^8$ となる。この図から融液内には 3 つの対流セルが存在していることがわかる。一つは融液/多結晶界面近くに存在する時計回りの小さな対流セルである。そして融液内で主流となっている反時計回りの対流があり、この流れの影響は融液の中心付近にまで達している。もう一つは融液下部に存在するやや小さな時計回りの対流である。また、このときの電磁場解析の結果を Fig.3-10 に示す。図の左がベクトルポテンシャルの虚数部分、右が実数部分を示している。次に、電磁場の影響がどれだけの深さまで影響するかという、いわゆる表皮効果について検討する。ここで無次元 skin depth は

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{N_A}} \quad (3.41)$$

と定義でき、融液部分においては $\delta = 0.078$ 、多結晶、結晶部分に関しては $\delta = 0.41$ である。このように、融液部分については表皮効果が小さいため電磁場が融液自由表面近傍に集中している。また、多結晶、結晶部分では融液に比べて電気伝導度が小さく表皮効果が大きいことから電磁場が内側まで浸透していることがわかる。

このような電磁場によって発生するローレンツ力で融液表面にかかる r 方向の力を Fig.3-11 に示す。この図から融液/多結晶界面よりやや下部においてもっとも強いローレンツ力が働いていることがわかる。しかし、この部分は結晶面に近すぎるため大きな流れを形成できない。 $z = 40.9$ 付近に F_r のもう一つのピークが存在する。ここから融液の内部に入り込むような流れが生じこれが主流になっている。そしてその逆方向の流れが融液下部及び上部に生じているということがわかった。また、 F_r の大きさは融液自由表面形状のわずかな違いにより大きく変化することがわかった。

なお、このときの融液内の最大速度は 24.8 cm/s となっていて、半径 5mm で高さも 5mm 程度の融液内の流れとしては相当大的な流れとなっている。



$$T_{\max}=1.0087, \phi_{\max}=196, \phi_{\min}=-345$$

Fig.3-9 Stream line and isotherms when $J_c'=1.4 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ and $\omega=1.4 \text{ MHz}$

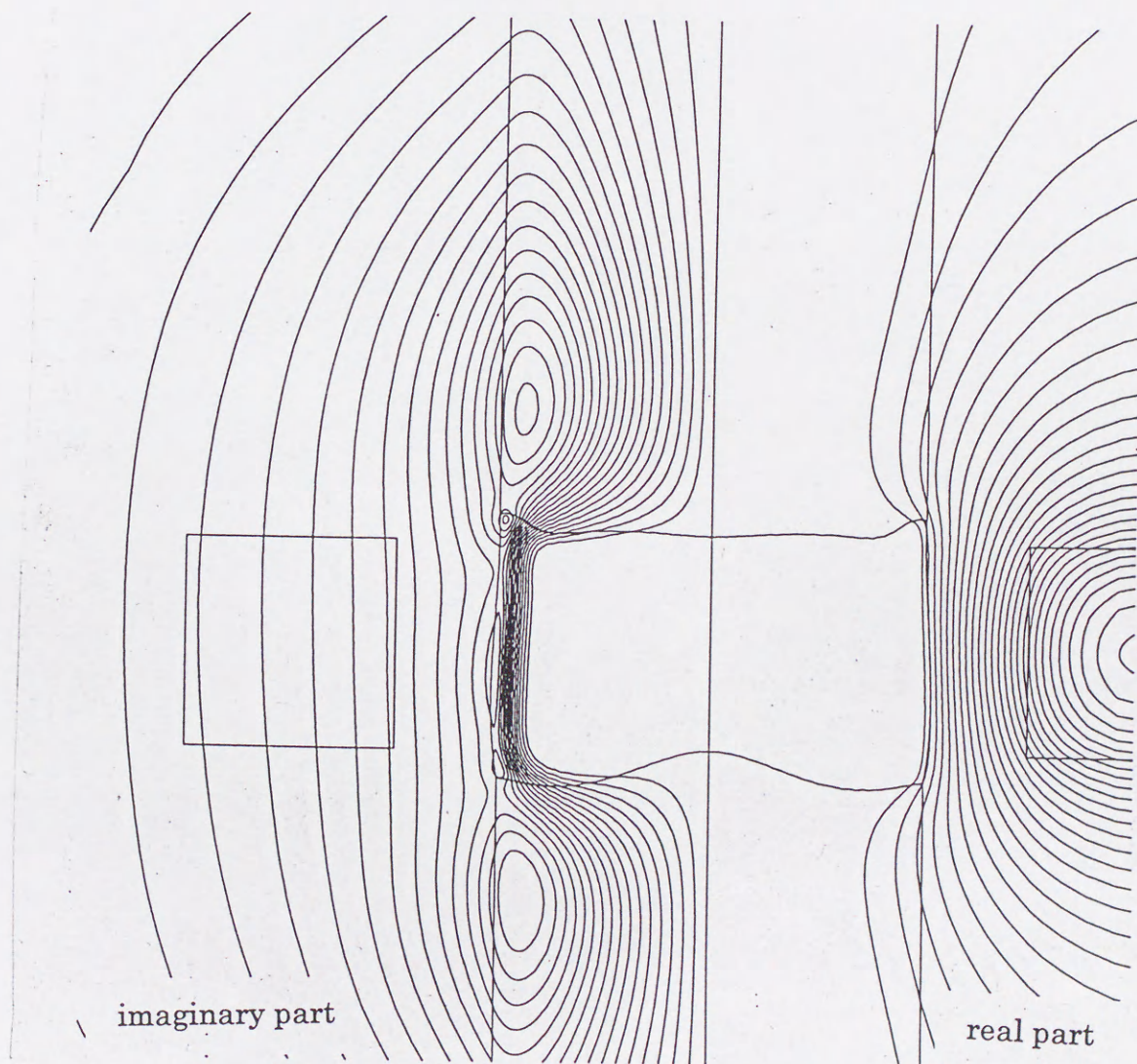


Fig.3-10 Electromagnetic fields in the FZ system
when $J_c'=1.4 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ and $\omega=1.4 \text{ MHz}$

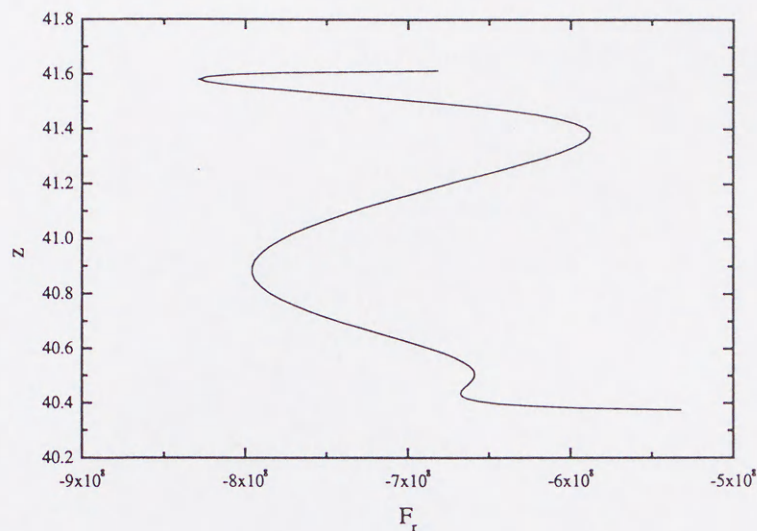
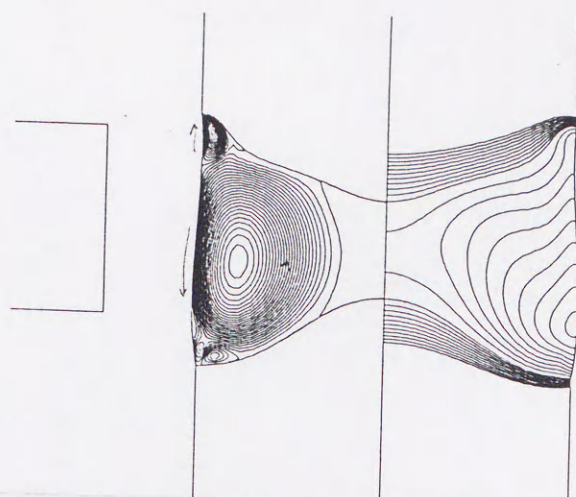


Fig.3-11 Lorenz force of r direction on the melt surface
when $J_c' = 1.4 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ and $\omega = 1.4 \text{ MHz}$

3.3.2.3 マランゴニ対流の影響

3.3.2.2 において高周波 FZ 炉の融液内に発生する MHD 対流の速度はかなり大きいことが明らかとなった。しかし、実際には MHD 対流に加え 3.3.1 で示したように、マランゴニ対流及び自然対流が重畳している。Fig.3-12 にコイル電流密度が $1.4 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ で周波数が 1.4 MHz つまり $N_Q = 3.89 \times 10^5$, $N_A = 3.32 \times 10^2$, $N_F = 8.44 \times 10^8$ で、 $Ma = 5.0 \times 10^6$ のときの融液内対流及び温度分布を示す。なお収束性の問題から実際よりも小さい Ma 数の値を使用した。結果として、MHD 対流の影響が強いものの、対流構造は $Ma=0$ の場合(Fig.3-9)とは異なり、MHD のみのときには融液下部にあった時計回りの対流セルは、融液の温度の高い部分から低い部分へと流れるマランゴニ対流の影響によって、小さくなることがわかる。また、この場合の融液内の最大速度はおよそ 30 cm/s となっていて最大流速は増加しているが、融液全体としては内部にまで対流の影響が及ばなくなるなど全体としては対流は抑制されていると考えられる。また、融液/多結晶及び融液/結晶界面の変形も大きくなくなっていることがわかる。このことから高周波加熱 FZ 炉における融液内対流はマランゴニ対流の影響をかなり強く受けることが予想される。



$$T_{\max}=1.0093, \phi_{\max}=145, \phi_{\min}=-256$$

Fig.3-12 Effect of MHD and Marangoni convection

when $N_Q=3.89 \times 10^5$, $N_A=3.32 \times 10^2$, $N_F=8.44 \times 10^8$ and $Ma=5.0 \times 10^6$

3.3.2.4 融液自由表面形状の影響

通常、MHD 対流は電磁力が相対的に大きな領域に向かって循環することが予想される。従って本節で対象としている 1 ターンコイルにおいては、コイルにもっとも近い融液自由表面近傍で電磁力が最大となることが考えられ、その結果融液内には固液界面から自由表面に沿って中心に向かう一対の対流セルが生じると思われた。しかし、結果は Fig.3-9 に示すようにこの予想とは大きく異なり 3 つの渦構造となった。その原因の 1 つとして融液自由表面の形状が考えられる。融液自由表面は重力の作用により Fig.3-9 に示すように融液の中心に対して上下非対称となる。この MHD 対流に及ぼす融液自由表面形状の影響を明らかにするための計算を行った。融液自由表面の形状に関する影響を明らかにするために、融液の長さを長く、つまり発熱量をやや大きくした計算を示す。コイル電流密度が $1.5 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ で周波数が 1.3MHz つまり $N_Q=4.25 \times 10^5$, $N_A=3.08 \times 10^2$ とし、 $Bo_g=8.69 \times 10^{-1}$ と $Bo_g=0$ の融液内の流れと温度分布を Fig.3-13 に示す。なお、ここでは $Ma=0$ とし、収束性の問題から $N_F=1.0 \times 10^7$ とした。 $Bo_g=0$ とした場合、融液/結晶界面の接触角が 11° なので融液自由表面は上下ほぼ対称に膨らむような形状になっている。この図から $Bo_g=8.69 \times 10^{-1}$ における融液内の対流は、反時計回りの流れが主流になっていて、融液上部に時計回りの小さい対流セルが存在していることがわかる。これに対して $Bo_g=0$ のときは上下にほぼ対称で、固液界面から自由表面に沿って中心に向かう一対の対流セルが生じて

いる。なぜこのような対流が発生するかについて明らかにするため、電磁場解析の結果の比較を Fig.3-14 に示す。またこの電磁場により発生するローレンツ力で、融液表面にかかる r 方向の力を Fig.3-15 に z 方向の力を Fig.3-16 にそれぞれ示す。Fig.3-14 から、 $Bo_g=0$ のときには電磁場の分布はほぼ上下対称となっている。これに対して、 $Bo_g=8.69 \times 10^{-1}$ においては融液/多結晶/気体の 3 相接触点において電磁場が密になっている。これは融液と多結晶部分との電磁力の差と融液が細くなっているという形状に起因するものであり、この部分には強い力が内部に働くと考えられる。しかし、この部分は固液界面に近すぎるため、融液内の流れに対してはあまり大きな影響は与えないと考えられる。そして、融液とコイルとの距離が近い部分で電磁場が密になっている。その影響もあり融液/結晶/気体の 3 相接触点においては融液/多結晶/気体ほど電磁場が密になっていないことがわかる。このことから Fig.3-15 のようなローレンツ力の分布が生じる。 $Bo_g=0$ のときにはほぼ上下対称であり、融液とコイルがもっとも接近している部分で融液内部に入り込むような強い力が生じている。そのため固液界面から自由表面に沿って中心に向かう一対の対流セルが生じていることがわかる。また、Fig.3-16 から F_z に関しても上下対称な力が融液に働いていることがわかる。一方、 $Bo_g=8.69 \times 10^{-1}$ においては融液/多結晶/気体の 3 相接触点において r 方向に強い力が生じていて、さらに融液がもっとも膨れている部分で強い力が r 方向に働いていることがわかる。また、Fig.3-16 から F_z は融液がもっとも膨れている部分を中心にしてマイナスの方向つまり下向きの流れを生じる方向に働いている。その上の融液がもっともくびれている部分では、逆に F_z はプラスの方向、つまり上向きの流れを生じる方向に働いていることがわかる。

このことから MHD 対流において融液自由表面形状の変形が対流の向きなどに大きな影響を与えることが示された。

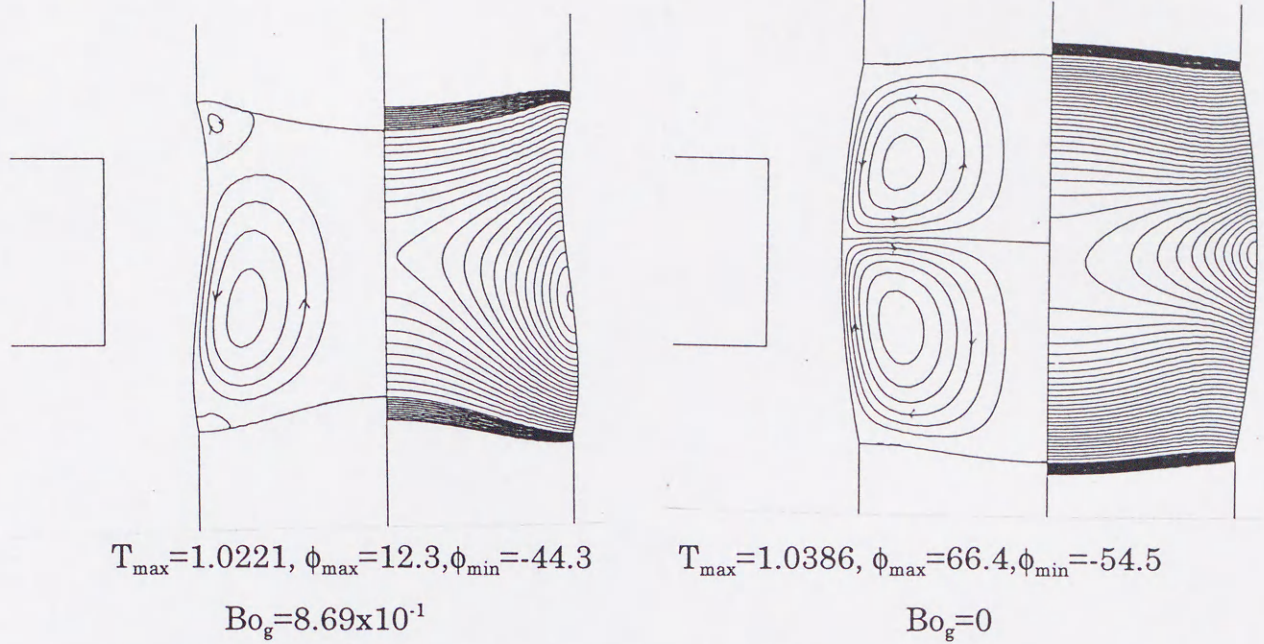


Fig.3-13 Effects of Bo_g when $N_Q=4.25 \times 10^5$, $N_A=3.08 \times 10^2$ and $N_F=1.0 \times 10^7$.

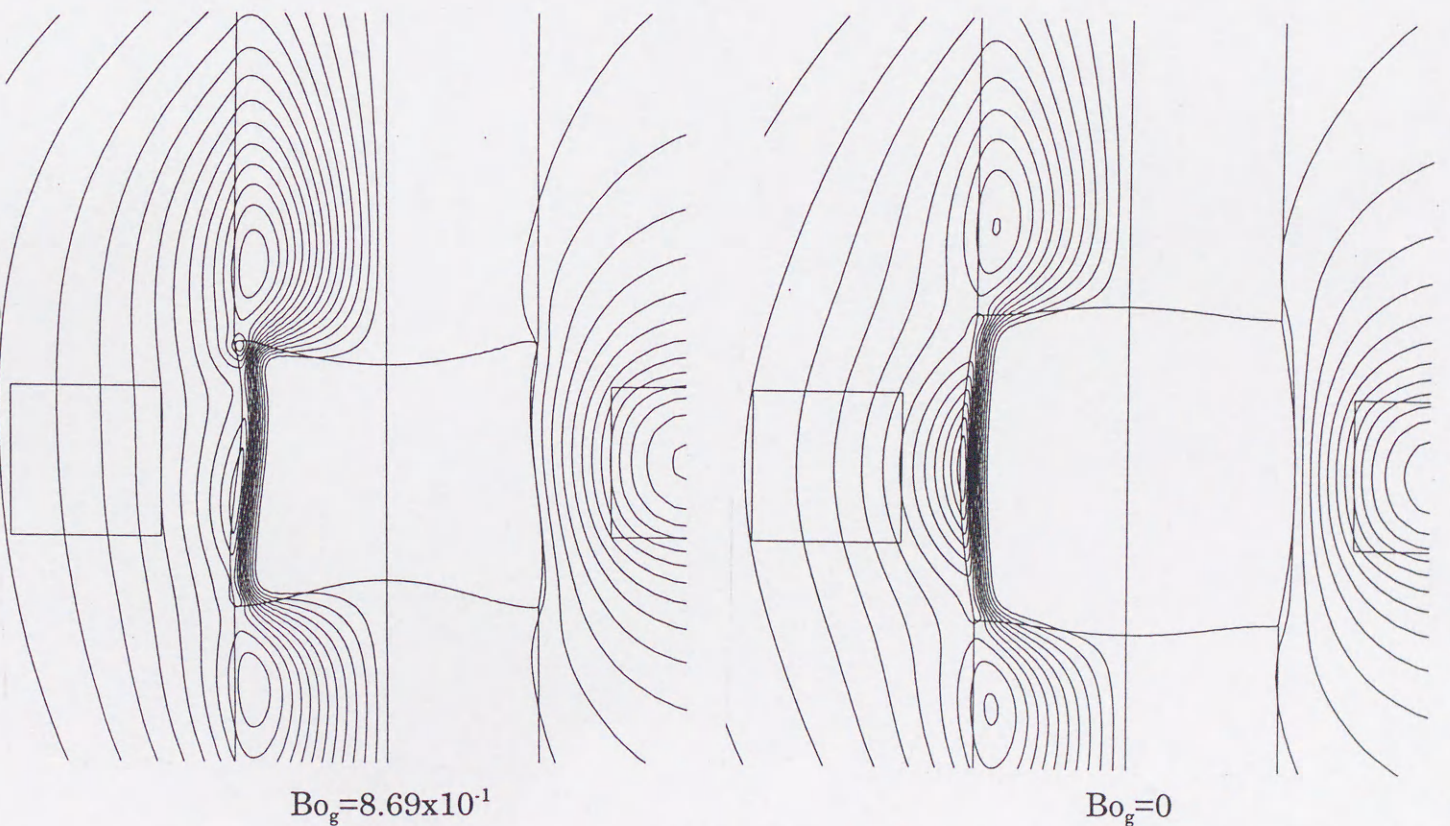
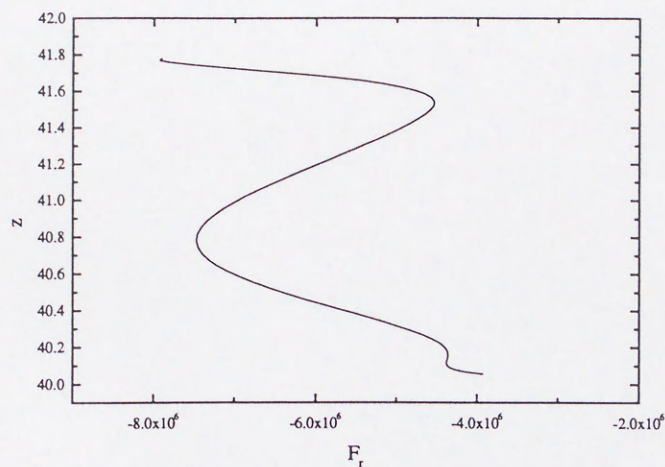
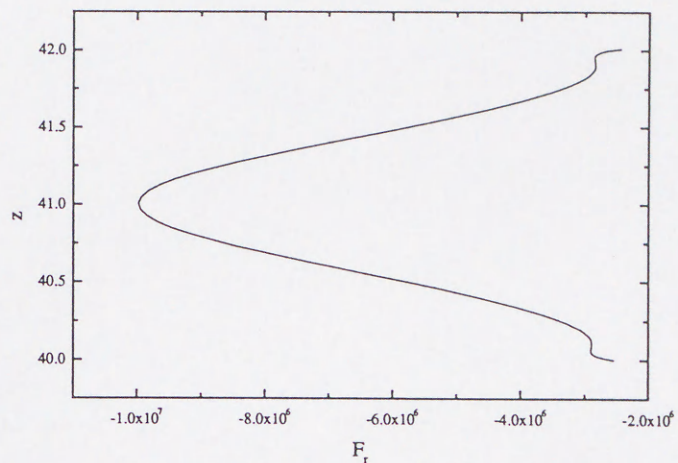


Fig.3-14 Electromagnetic field in the FZ system when $Bo_g=8.69 \times 10^{-1}$ and $Bo_g=0$.

($N_Q=4.25 \times 10^5$, $N_A=3.08 \times 10^2$ and $N_F=1.0 \times 10^7$)

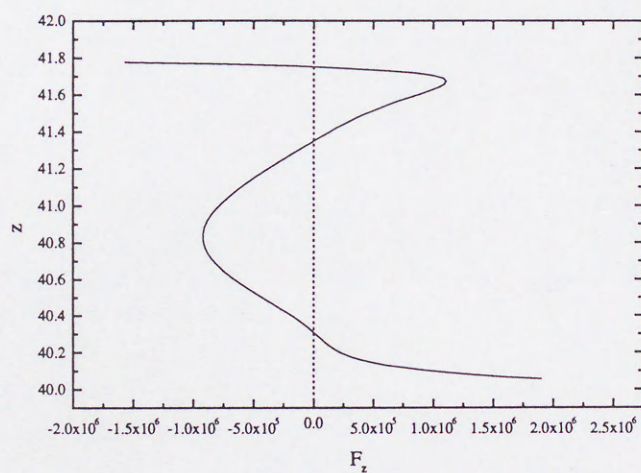


$$Bo_g = 8.69 \times 10^{-1}$$

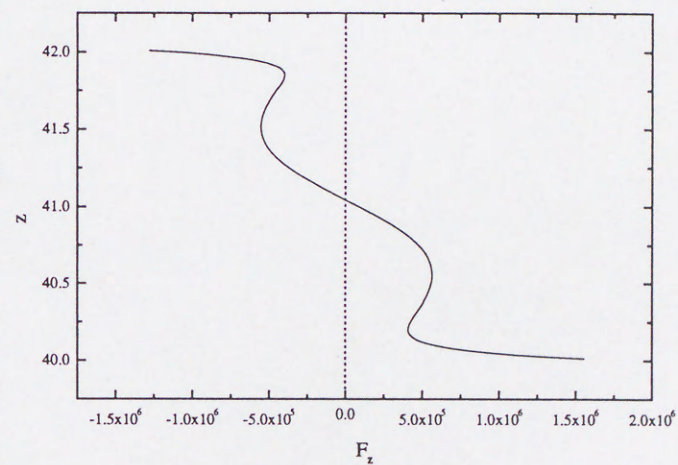


$$Bo_g = 0$$

Fig.3-15 Lorenz force of r direction on the melt surface when $N_Q = 4.25 \times 10^5$, $N_A = 3.08 \times 10^2$ and $N_F = 1.0 \times 10^7$.



$$Bo_g = 8.69 \times 10^{-1}$$



$$Bo_g = 0$$

Fig.3-16 Lorenz force of z direction on the melt surface when $N_Q = 4.25 \times 10^5$, $N_A = 3.08 \times 10^2$ and $N_F = 1.0 \times 10^7$.

3.4 結言

輻射加熱及び高周波加熱 Floating Zone 法によるシリコン単結晶育成プロセスに関し、固液界面形状、温度場、融液内対流などを考慮できる総合熱解析プログラムを作成した。界面変形の取り扱いには境界適合座標を用いた。さらに、そのプログラムを用いて数値解析を行い、融液内対流に及ぼす諸因子の影響について検討した。

その結果、輻射加熱による FZ 炉の場合、シリコンのようなプラントル数が小さい物質においても温度場や界面形状に対する流れの影響が強いこと、そして融液内の対流は表面張力差によるマランゴニ対流支配であることが明らかとなった。また、周囲温度、結晶育成速度の融液内対流及び固液界面形状に及ぼす影響について明らかにした。特に、実際の結晶育成プロセスにおいて重要な操作パラメータである結晶育成速度が増加すると、融液/結晶界面は平坦化し、融液/多結晶界面は逆に融液に対してより凸になる傾向があることがわかった。

また、高周波加熱の場合は MHD 対流により融液内に強い対流が生じていて主流をなしているが、マランゴニ対流による影響も大きいことがわかった。また融液自由表面形状の変化により MHD 対流はその向きが大きく変化することが示された。

Appendix 3- I

高周波加熱 FZ 法による温度場及び界面形状の変形(融液内対流を考慮しない場合)

3a.1 電磁場解析について

電磁場解析は、一般に無限遠に境界を持つ問題であり、これを有限差分法あるいは有限要素法のような領域型の解法を用いて解く場合、本章で行ったように解に対して本質的な影響を与えない適当な境界を設定する必要がある。一方有限差分法、有限要素法に並ぶ数値解法として知られる境界要素法は、物体表面を定義するだけでよい、また無限遠の境界を持つ問題を扱えるなどの長所を有するが、領域内の状態量は間接的に求める方法である。このような個々の数値解析の欠点と長所をふまえて、最近有限要素法と境界要素法を組み合わせたハイブリッド法が電磁場解析に使用されている¹⁵⁾。ただし、この方法により本章の解析を行った場合、融液内対流の解析には有限要素法を用いることになり、離散後のマトリックスが大きくなるなど解析において困難な点が生じる。

ここでは融液内の流れを無視し、有限要素法と境界要素法を組み合わせたハイブリッド法を用いて、高周波加熱シリコン FZ 炉内の電磁場、温度場、界面形状を計算した結果を示す。なお本 Appendix では融液長が比較的長い場合を扱うため、電磁ボンド数を考慮した計算を行った。

3a.2 計算方法

3a.2.1 基礎式及び離散化

電磁場についての基礎式は本章で示した。温度場については流れの影響を無視したエネルギー方程式である。融液自由表面形状の計算では電磁ボンド数を考慮した。

今回の高周波加熱 FZ 炉の計算に用いた座標系を Fig.3a-1(a)に示す。FZ 炉内の温度場の解析、融液自由表面形状の解析、そして点線内の電磁場の解析には有限要素法を用いて計算する。

一方、Fig.3a-1(a)の点線で表されている部分の電磁場計算には境界要素法を用いる。以

下に有限要素法と境界要素法のハイブリッド法を適用し、得られる離散化方程式の導出法について簡単に示す。

まず自由空間におけるベクトルポテンシャルは次式を満たす。

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial A}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} - \frac{A}{r^2} = 0 \quad (3a.1)$$

ここで応答関数である G を導入する。これは (r_0, z_0) にある環電流により生じる (r, z) でのベクトルポテンシャルであり、

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial G}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 G}{\partial z^2} - \frac{G}{r^2} = -\delta(r-r_0, z-z_0) \quad (3a.2)$$

となる。ここで第1種、第2種完全楕円積分 $K(k), E(k)$ を導入すると

$$G = \frac{1}{\pi k} \sqrt{\frac{r_0}{r}} \left\{ \left(1 - \frac{k^2}{2} \right) K(k) - E(k) \right\} \quad (3a.3)$$

となり、 k は

$$k^2 = 4rr_0 / [(r-r_0)^2 + (z-z_0)^2] \quad (3a.4)$$

と表すことが出来る。

ここで Fig.3a-1(a) の点線上での積分方程式として次式が得られる。

$$\int_s \left(G \frac{\partial A}{\partial n} - A \frac{\partial G}{\partial n} \right) r ds = \frac{1}{2} r_0 A(r_0, z_0) \quad (3a.5)$$

式(3a.5)を離散化するため点線上を0次の要素に区切る。各要素において A 及び A の勾配が一様であるとする。式(3a.5)は次のような式で表すことが出来る。

$$[F][q] - [H][A] = \{0\} \quad \text{ここで } q = \partial A / \partial n \quad (3a.6)$$

マトリックスの $[F]$ と $[H]$ は

$$F_{ij} = \begin{cases} \int_s G r ds = G_{ij} r_j w_j & i \neq j \\ \frac{w_i}{2\pi} \left(\ln \frac{16r_i}{w_i} - 1 \right) & i = j \end{cases} \quad (3a.7)$$

$$H_{ij} = \begin{cases} \int_s \frac{\partial G}{\partial n} r ds = \left(\frac{\partial G}{\partial n} \right)_{ij} r_j w_j & i \neq j \\ \frac{1}{2} r_i & i = j \end{cases} \quad (3a.8)$$

となる。ここで w_i は1次元要素の長さである。

Fig.3a-1(a) の点線内部については有限要素法により離散化を行う。形状関数 ϕ を用いてベクトルポテンシャルを次のように表す。

$$A = \sum_1 \phi_1 A_1 \quad (3a.9)$$

この式を電磁場の基礎式(3a.1)に当てはめると、自由空間において

$$\int_v \frac{\partial \phi_k}{\partial r} \frac{\partial A}{\partial r} r dr dz + \int_v \frac{\partial \phi_k}{\partial z} \frac{\partial A}{\partial z} r dr dz + \int_v \phi_k \frac{A}{r^2} r dr dz - \int_s \phi_k q r dS = 0 \quad (3a.10)$$

と表すことが出来る。そして式(3a.6)で求められた q を用いて点線内の電磁場を求めることが出来る。

3a.2.2 座標変換

高周波加熱 FZ 炉では融液部分の変形は大きい、それと近接しているコイル部分はそれの変形とは全く関係がない。そのため座標変換の分割の際にはコイル部分は融液部分と独立になるような分割が望ましい。そのため計算領域の座標変換について Fig.3a-1(b)に示す。図のように計算領域を融液部分とコイル部分が独立するように 11 に分割する。そして各領域について座標変換を行い電磁場や温度場について計算する。

region11 は高周波コイルとその周辺である。この領域は座標変換を行う必要はない。しかしそれ以外の部分については融液部分の変形の影響によって座標変換の必要がある。10 個の領域それぞれについて (r, z) 座標を (η, ζ) 座標に変換する方法について Table 3a-1 に示す。

3a.2.3 繰り返し計算

3a.2.1 から 3a.2.2 までで用いられた方法で電磁場、温度場、界面形状を未知数としてマトリックスをつくりこれを解くことにする。解くべき方程式は次のように表される。

$$\mathbf{R}(\mathbf{x}; \mathbf{p}) = 0 \quad (3a.11)$$

\mathbf{x} は未知数のベクトルであり、 \mathbf{p} は結晶育成速度等のパラメータである。これを解くマトリックスには界面形状が未知数に含まれているため単純なバンドマトリックスにはならず、「矢型」のマトリックスとなる。これを解くことにより未知数をもとめる。なお非線形項に対する解法としてはニュートンラプソン法を用いた。

3a.3 計算結果

計算は結晶半径が 5mm のものについて行った。そして物性値は電気伝導度をのぞいて Table3-1 のものを用いている。多結晶体と結晶の電気伝導度は $1.2 \times 10^6 \text{Sm}^{-1}$ とし融液の熱伝導度は $1.0 \times 10^6 \text{Sm}^{-1}$ として計算した。

まず 3a.2.2 で述べたようにコイル部分と融液部分を独立にするような座標系を用いたことにより、融液の変形が大きい場合についても計算できるということを示すためにコイルの電流密度が 1.93×10^7 、周波数が 1.3MHz、そして結晶成長速度が 16.3cm/h であり電磁ポンド数を 0 としたときの計算結果を Fig.3a-2 に示す。Fig.3a-2(a)は温度分布と界面形状を示しており、Fig.3a-2(b)はそのときの有限要素法のメッシュを示している。この図を見ると融液部分の変形は大きくまた融液の長さもコイルに比べてかなり長くなっていることがわかる。このように大きく変形した系についても安定に解が得られることがわかる。

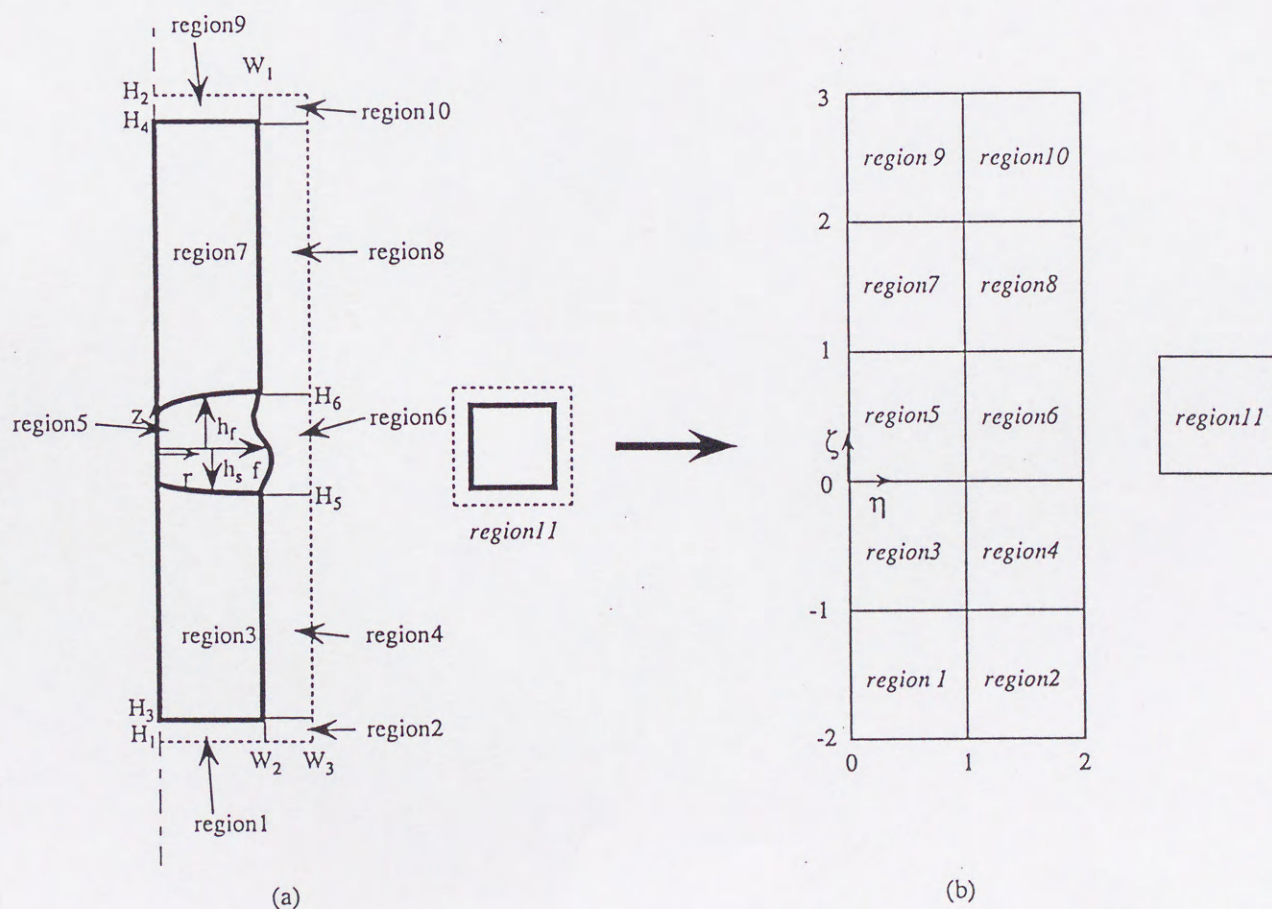


Fig. 3a-1 Schematic diagram of coordinate transformation

Table 3a-1 Coordinate transformations in ten regions

	$r \rightarrow \eta$	$z \rightarrow \zeta$
region 1	$\eta=r/W_2$	$\zeta=(z-H_1)/(H_3-H_1)-2$
region 2	$\eta=(r-W_2)/(W_3-W_2)+1$	$\zeta=(z-H_1)/(H_3-H_1)-2$
region 3	$\eta=r/W_2$	$\zeta=(z-H_3)/(h_s-H_1)-1$
region 4	$\eta=(r-W_2)/(W_3-W_2)+1$	$\zeta=(z-H_3)/(H_5-H_1)-1$
region 5	$\eta=r/f$	$\zeta=(z-h_s)/(h_f-h_s)$
region 6	$\eta=(r-f)/(W_3-f)$	$\zeta=(z-H_5)/(H_6-H_5)$
region 7	$\eta=r/W_1$	$\zeta=(z-h_f)/(H_4-h_f)+1$
region 8	$\eta=(r-W_1)/(W_3-W_1)+1$	$\zeta=(z-H_6)/(H_4-H_6)+1$
region 9	$\eta=r/W_2$	$\zeta=(z-H_4)/(H_2-H_4)+2$
region 10	$\eta=(r-W_1)/(W_3-W_1)+1$	$\zeta=(z-H_4)/(H_2-H_4)+2$

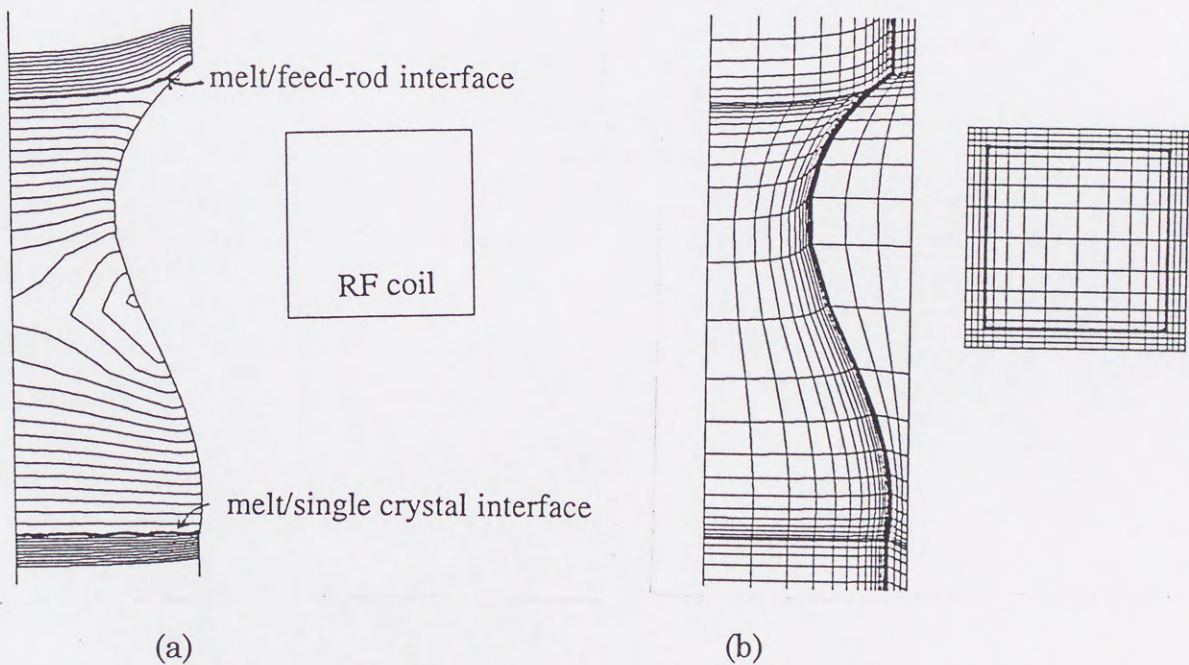


Fig.3a-2 (a)Temperature field in the molten zone and the interface shapes for $J'_c=1.93 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ and $Bo_e=0$
(b) Finite element discretization

Fig.3a-3 及び 3a-4 に $Bo_e=0$ 及び $Bo_e \neq 0$ の場合に関し、系内温度分布及び融液形状に及ぼす電流密度の影響を示す。ここで、コイルの周波数は 1.3 MHz、結晶成長速度が 16.3cm/h である。なお、電磁ボンド数はコイル電流密度の値により変化する。例えば、電流密度が $J'_c=1.6 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ のときは $Bo_e=55.9$ であり、 $J'_c=1.8 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ のときは $Bo_e=70.7$ となる。

Fig.3a-3 及び 3a-4 より、電流密度の増加とともに、系内発熱量が大きくなり融液の長さが長くなることがわかる。また両図の同じ電流密度の結果を比較すると、電磁ボンド数を考慮しない場合の方が融液の長さが長くなっており、融液内の温度も高くなっていることがわかる。また、電磁力は融液に対して内向きに働く。いま、融液長さがほぼ等しい Fig.3a-3 の $J'_c=1.7 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ と、Fig.3a-4 の $J'_c=1.8 \times 10^7 \text{ A/m}^2$ を比較すると、電磁力を考慮した場合の方が明らかに融液部分が細くくびれていることがわかる。以上より、高周波加熱 FZ 法によるシリコン単結晶育成時においては、電磁力が界面形状及び融液長に対して大きな影響を及ぼすことがわかった。

また、融液が安定して存在できる範囲を知ることは実際の装置を扱う上で重要な情報である。Fig.3a-5 に結晶成長速度が 16.3cm/h の場合のコイル電流密度と周波数の変化による液柱の安定存在範囲を示す。ここで結晶と多結晶が接触してしまうコイル電流密度を $J'_{c, \min}$ とし、融液が長くなりすぎて計算で収束解が得られなかった場合のコイル電流密度を $J'_{c, \max}$ とした。この図から周波数が増加すると発熱量が上がるため、 $J'_{c, \min}$ 及び $J'_{c, \max}$ の値は下がるということがわかった。

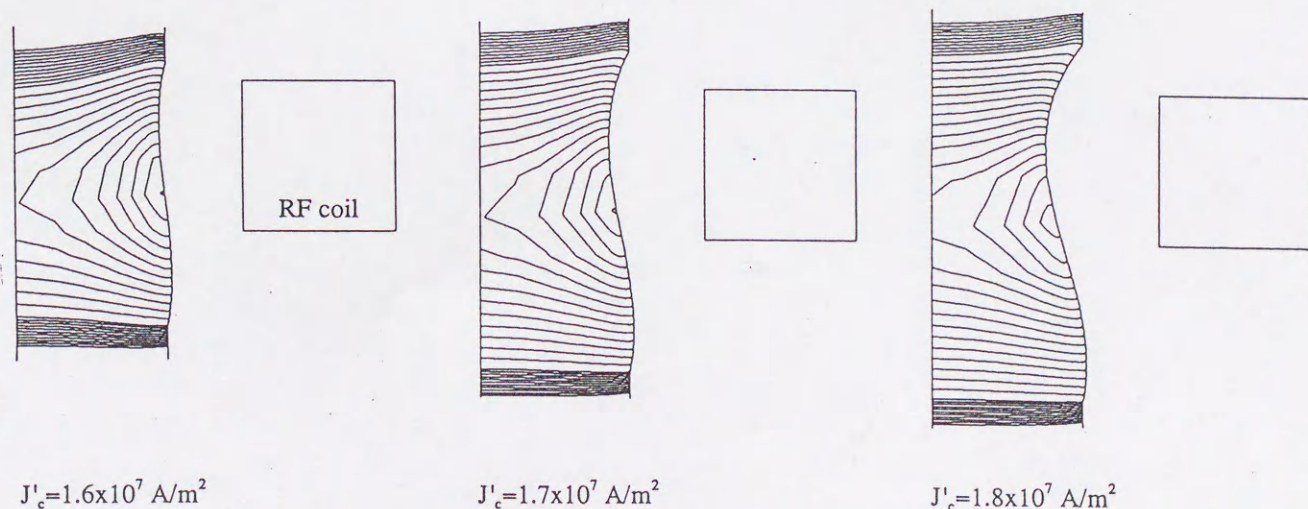


Fig.3a-3 Temperature fields and the shape of molten zone for $Bo_e=0$

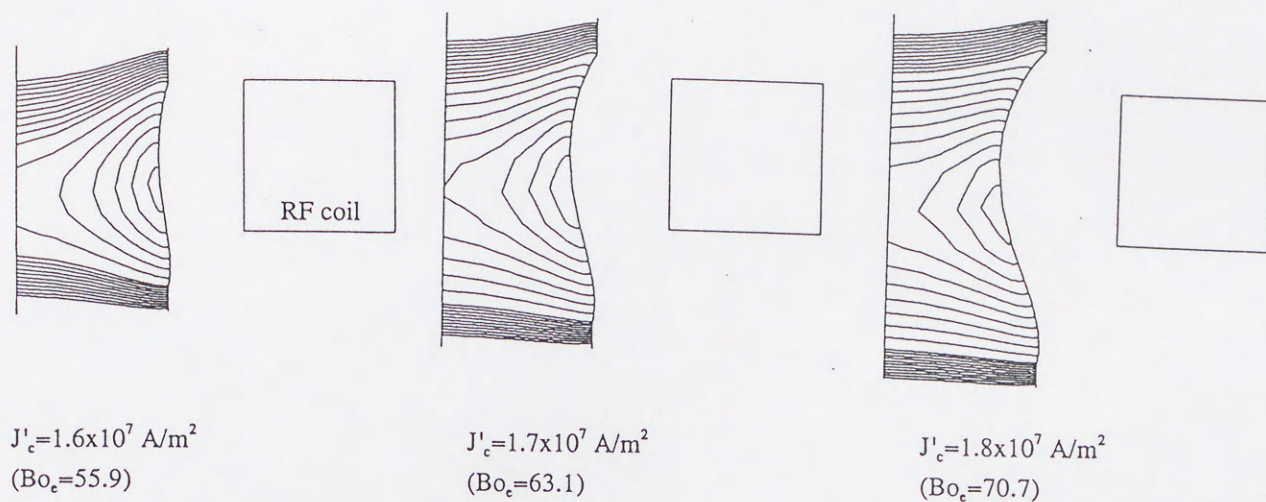


Fig.3a-4 Temperature fields and the shape of molten zone with electromagnetic Bond number

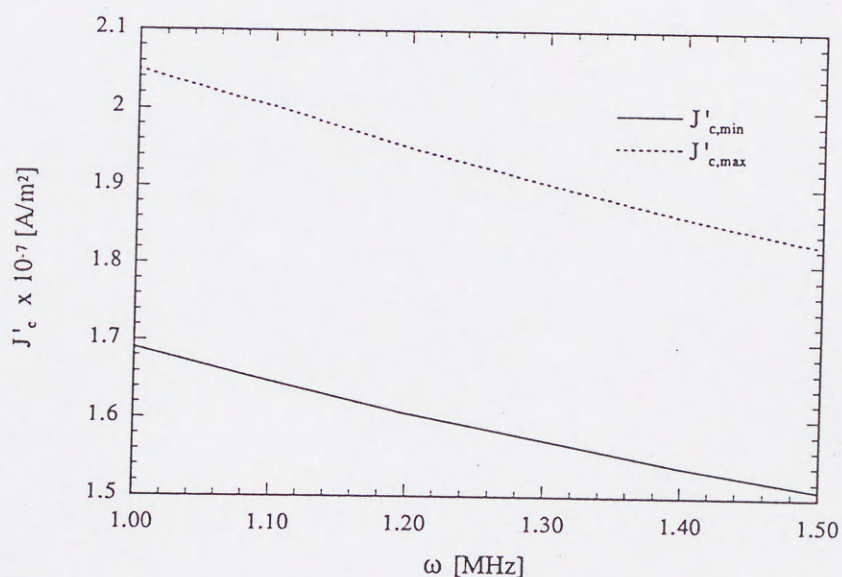


Fig. 3a-5 Diagram for the upper and lower limits of J'_c in RF FZ system

3a.4 まとめ

高周波加熱 FZ 法によるシリコン単結晶育成時の電磁場、温度場、界面形状についての解析を行った。計算は電磁場については有限要素法と境界要素法を組み合わせたハイブリッド法、温度場及び界面形状には有限要素法を用いて離散化を行った。計算の結果、コイルの電流密度そして電磁力が融液形状に及ぼす影響が明らかになった。

3.5 使用記号

a	=	non-dimensional width of Gaussian distribution $=a'/r'_{\text{ref}}$	[-]
a'	=	width of Gaussian distribution	[m]
A	=	non-dimensional A'	[-]
A'	=	angular magnetic vector potential	[Wb m ⁻¹]
B	=	magnetic induction	[Wb m ⁻²]
B_s	=	tangential magnetic field	[-]
Bo_g	=	Bond number	[-]
Bo_e	=	electromagnetic Bond number	[-]
Bi	=	Biot number	[-]
c_p	=	heat capacity	[J kg ⁻¹ K ⁻¹]
F	=	non-dimensional power	[-]
f	=	meniscus function	[-]
g	=	gravitational acceleration	[m s ⁻²]
g_{11}, g_{12}, g_{22}	=	geometric relations between coordinate systems	[-]
G	=	response function	[-]
h	=	heat transfer coefficient	[W m ⁻² K ⁻¹]
H	=	curvature of meniscus	[-]
ΔH_f	=	heat of fusion	[J kg ⁻¹]
J	=	Jacobian	[-]
J	=	non-dimensional current density $=J'/J'_c$	[-]
J'_c	=	current density in RF coil	[A m ⁻²]
k	=	thermal conductivity	[W m ⁻¹ K ⁻¹]
n	=	outward normal unit	[-]
N_A	=	non-dimensional number defined by equation (3.23)	[-]
N_F	=	non-dimensional number defined by equation (3.40)	[-]
N_Q	=	non-dimensional number defined by equation (3.36)	[-]
P	=	non-dimensional pressure $=P'r'^2_{\text{ref}}/\rho v$	[-]
P'	=	pressure	[Pa]
Pe	=	Peclet number	[-]
q	=	normal derivatives of A	[-]

Q	=	non-dimensional heat source	[-]
r	=	non-dimensional radial distance in cylindrical coordinate $=r'/r'_{\text{ref}}$	[-]
r'	=	radial distance in cylindrical coordinate	[m]
r'_{ref}	=	radius of crystal	[m]
R	=	radiation number	[-]
St	=	Stefan number	[-]
T	=	non-dimensional temperature $=T'/T'_{\text{melt}}$	[-]
T'	=	temperature	[K]
T'_{melt}	=	temperature of silicon melting point	[K]
u	=	non-dimensional radial velocity $=u'/r'_{\text{ref}}v$	[-]
u'	=	radial velocity	[m/s]
U	=	contravariant velocity component	[-]
V	=	crystal growth rate	[m s ⁻¹]
w	=	non-dimensional axial velocity $=w'/r'_{\text{ref}}v$	[-]
w'	=	axial velocity	[m/s]
W	=	contravariant velocity component	[-]
z	=	non-dimensional axial distance in cylindrical coordinates $=z'/r'_{\text{ref}}$	[-]
z'	=	axial distance in cylindrical coordinates	[m]

Greek symbols

α	=	electric conductivity ratio	[-]
β	=	efficient of thermal expansion	[K ⁻¹]
ε	=	emissivity	[-]
ϕ	=	stream function	[-]
γ	=	surface tension	[N m ⁻¹]
η	=	axis of curvilinear coordinates	[-]
κ	=	thermal conductivity ratio	[-]
λ	=	reference pressure difference	[-]
μ	=	viscosity	[Pa s]
μ_0	=	magnetic permeability in free space	[H m ⁻¹]
ν	=	kinematic viscosity	[m ² s ⁻¹]
ρ	=	density	[kg m ⁻³]

σ	=	electric conductivity	[S m ⁻¹]
σ_0	=	Stefan-Boltzmann's constant	[W m ⁻² K ⁻⁴]
ω	=	frequency of RF coil	[Hz]
ξ	=	axis of curvilinear coordinates	[-]
ψ	=	contact angle	[rad]

Subscripts

a	free space
c	RF coil
f	feed
L	melt/crystal interface
m	melt
p	peak
r	r direction
ref	reference
s	crystal
U	melt/feed interface
z	z direction

Superscript

I	imaginary part
R	real part
'	dimensional

3.6 参考文献

- 1) 千川圭吾編著、「バルク単結晶成長技術」、培風館
- 2) X. Bin et al; J. Crystal Growth, 133, 1993, 155
- 3) C.W. Lan et al; J. Crystal Growth, 133, 1993, 309
- 4) Y. Okano et al; Num. Heat Transfer, 31, 1997, 407
- 5) 日本機械学会編「伝熱工学の進展 第1巻」、養賢堂
- 6) A. Mühlbauer et al; J. Crystal Growth, 64, 1983, 529
- 7) A. Mühlbauer et al; J. Crystal Growth, 151, 1995, 66
- 8) 十河 private communication
- 9) C.W. Lan, et al; J. Crystal Growth, 108, 1991, 351
- 10) C.W. Lan, et al; J. Crystal Growth, 118, 1991, 517
- 11) J.C. Chen, et al; J. Crystal Growth, 154, 1995, 98
- 12) J.L. Duranceau, et al; J. Crystal Growth, 75, 1986, 367
- 13) 鈴木大輔、「FZ シリコン単結晶育成時の熱流動解析」、修士学位論文
- 14) S.V. Patankar; "Numerical Heat Transfer and Fluid Flow", 1980
- 15) T. Miyoshi, et al IEEE Trans. Magnetics, MAG-23, 1987, 1827

第4章

多孔質体内二重拡散による振動現象

4.1 緒言

第2章及び第3章では融液からの結晶成長プロセスに関わる熱対流現象を取り扱った。第4章では溶液成長に関する熱対流現象を対象とする。溶液成長における熱物質移動に着目した研究では $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ 系¹⁾²⁾³⁾や $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-H}_2\text{O}$ 系⁴⁾⁵⁾⁶⁾がよく用いられている。ここで、 $\text{Na}_2\text{CO}_3\text{-H}_2\text{O}$ 系の共晶温度及び濃度は -2.1°C 、 $5.9\text{wt}\%$ であり、初期濃度が共晶濃度より高い場合は炭酸ナトリウムが先に結晶化し、固液共存領域いわゆるマッシーゾーン(mushy zone)が発生する。このような系の一方向凝固過程とそのときの移動現象について模式的に描いた図を Fig.4-2 に示す。溶液内では凝固した部分と凝固していない部分との間で温度差が生じ、さらに結晶化によって溶液部分に濃度差が生じる。このことから、溶液成長時には温度による対流と濃度による対流が共存しているため二重拡散対流が発生している。特に、マッシーゾーン内では、その構造から多孔質体内の二重拡散対流であると近似できる⁵⁾。従って、溶液成長時の熱物質移動特性を理解するためには、このマッシーゾーン内の二重拡散対流の機構をいかに正確に把握するかが鍵となる⁷⁾。

多孔質体内二重拡散は、結晶成長以外にも電気化学、地熱など様々な分野で観測されている。例えば、電池内には電極間の接触を防ぐためにセパレーターが挿入されており、これを多孔質とみなすことが出来る。そして放電あるいは充電時に電極間に濃度勾配が生じ、温度による対流と濃度による対流が共存することになる⁸⁾⁹⁾。

以上のようなことから多孔質体内二重拡散は様々な分野で数多く、特に単純な矩形容器内の対流を対象とした研究が行われてきた。しかし、矩形容器のアスペクト比 A がある程度以上の大きさになると発生する、多孔質体内二重拡散の振動現象については未だ不明な点が多く残されている。

本章では、この振動現象の機構について数値シミュレーションにより詳細に検討することを目的とした。すなわち、振動発生に関して最も重要なパラメータである浮力比 N に関して、振動が発生する N の範囲を求めた。また、その範囲を $N_{\min} \leq N \leq N_{\max}$ と表し、レイリー数、ルイス数と N_{\min} 、 N_{\max} との関係をマップにまとめた。さらに振動の形態に及ぼす各種パラメータの影響についても明らかにする。

なお Trevisan と Bejan¹⁰⁾は上下方向に無限の長さを持つ場合の解析解を求めているが、彼らの使用した境界条件には誤りがあるため、本研究では正しい条件における解析解も同

時に導出した。これについては Appendix4- I で説明する。

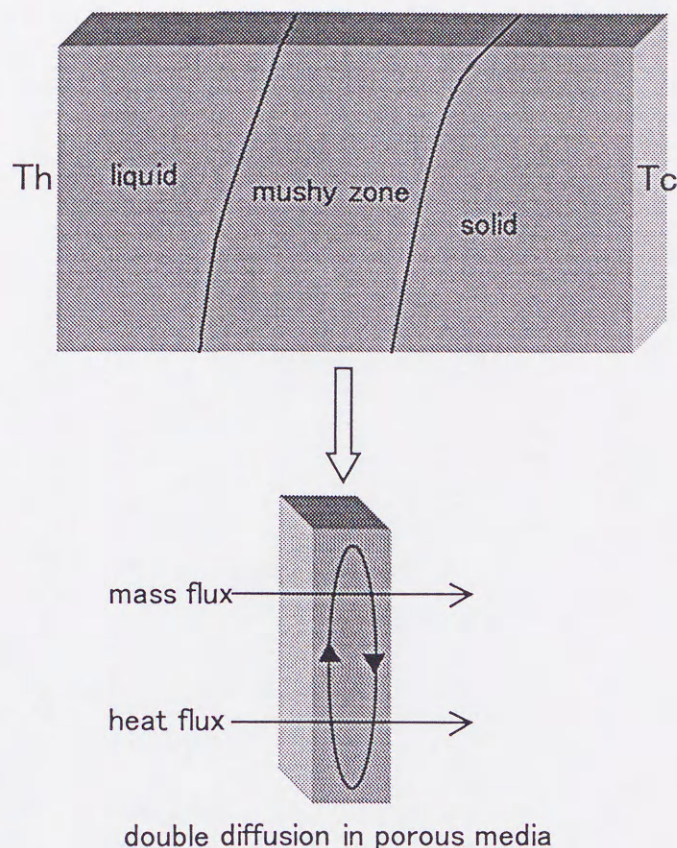


Fig.4-1 Schematic model of solution crystal growth system and the phenomena in mushy zone

4.2 基礎式及び解析方法

4.2.1 基礎式及び境界条件

計算で用いた二次元モデルの座標系を Fig.4-2 に示す。高さ $2H$ 幅 $2h$ の長方形の一様な飽和多孔質体からなる領域を考える。上部と下部の壁面においては熱、物質移動はないものとする。一方、左右の側壁については同じ大きさで一定の熱及び物質流束が与えられているものとする。

多孔質体内の現象なので Darcy 則が成り立つものと仮定する。代表長さを h とし、温度、濃度、流速、時間を以下のように無次元化する。

$$t = \frac{Dt'}{h^2}, \mathbf{u} = \frac{h\mathbf{u}'}{D}, \theta = \frac{c}{\Lambda_c h}, \phi = \frac{T}{\Lambda_T h}, x = \frac{x'}{h}, y = \frac{y'}{h} \quad (4.1)$$

無次元化された基礎式を(4.2)から(4.4)に示す。

$$\mathbf{u} = -\nabla P - R_c(\theta - N\phi)\mathbf{e}_y \quad (4.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (4.3)$$

$$\varepsilon \frac{\partial \theta}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \theta = \nabla^2 \theta \quad (4.4)$$

$$\sigma \frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \phi = Le \nabla^2 \phi \quad (4.5)$$

ここでこれらの基礎式中の各無次元数は以下の式により定義される。

$$\text{レイリー数 } R_c = \frac{kg\beta\Lambda_c h^2}{\nu D}, \text{ 浮力比 } N = \frac{\alpha\Lambda_T}{\beta\Lambda_c}, \text{ ルイス数 } Le = \frac{\kappa}{D}$$

境界条件は

$$x = \pm 1 \text{ において } \frac{\partial \theta}{\partial x} = -1, \frac{\partial \phi}{\partial x} = -1, u = 0 \quad (4.6)$$

$$y = \pm A \text{ において } \frac{\partial \theta}{\partial y} = 0, \frac{\partial \phi}{\partial y} = 0, v = 0 \quad (4.7)$$

となる。

これらの式及び境界条件を流れ関数 ψ を導入して変形する。すると \mathbf{u} は

$$\mathbf{u} = \left(\frac{\partial \psi}{\partial y}, -\frac{\partial \psi}{\partial x} \right) \quad (4.8)$$

と表すことが出来る。これを用いて変形すると式(4.2)(4.3)は次のように変形できる。

$$\nabla^2 \psi = R_c \left(\frac{\partial \theta}{\partial x} - N \frac{\partial \phi}{\partial x} \right) \quad (4.9)$$

ここで境界条件は

$$x = \pm 1 \text{ および } y = \pm A \text{ において } \psi = 0 \quad (4.10)$$

となる。

初期条件は

$$\theta = \phi = 0, \mathbf{u} = 0 \quad (4.11)$$

とし、今回の計算ではアスペクト比は $A = 5$ とおいた。

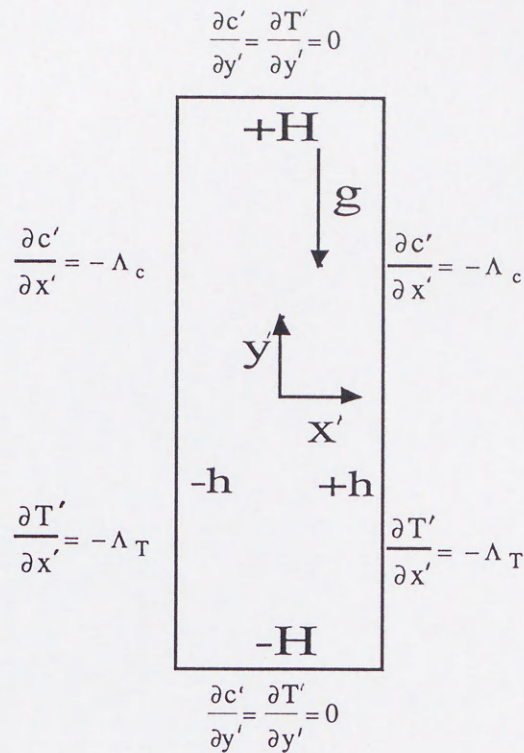


Fig. 4-2 The geometry of the porous enclosure

4.2.2 計算方法

差分法により式(4.9)を境界条件(4.10)、初期条件(4.11)のもとに解いた。メッシュは x, y それぞれの方向に等間隔とし、境界上($x=\pm 1$ 及び $y=\pm A$)には格子点はなく、境界外にもう 1 点格子点をもうけてそれと隣り合う境界内の格子点との間で境界条件となる流束を与えている。空間微分には二次精度の中心差分、時間微分には一次精度の前進差分を用いた。マトリックス解法には共役勾配法を用い、各時間において打ち切り誤差が 10^{-5} 以下になるまで繰り返し計算を行った。またメッシュについては解の傾向が変わらなくなるまで細かくし、今回の計算では $R_c=50, 100$ の場合には 50×250 、 $R_c=200, 300$ の場合には 60×300 のメッシュを用いて計算を行った。

4.3 結果及び考察

4.3.1 解析解と数値計算により得られる振動解の関係

上下方向の壁面の影響が無視でき、定常状態を仮定した、基礎式及び境界条件を、体積、総質量、総エンタルピの保存則及び対流と拡散による水平面における濃度及びエンタルピのバランスを考えることによって解析解を求める。なお、解析解の導出についての詳細は Appendix4- I に記す。

浮力比 N が $0.5 \leq N < 1$ の場合には、二つの解が存在することがわかった。Fig.4-3 は $R_c=100, Le=10$ のときの N と Nu の関係についての解析解である。なお、 $N=1.0$ のときには熱及び物質が分子拡散によってのみ移動し、対流が全く発生しない。つまり解析解は $Nu=Sh=1.0$ となる。従って Fig.4-3 において温度勾配による対流が実線で表されているが $N=1.0$ のときには実線上にその値は存在しない。

数値計算により振動解が得られるのは、ほとんどが Fig.4-3 において多重解が得られる部分であること、さらにこのときに求められる二種類の解析解とは、温度勾配による対流が支配的な場合と、濃度差による対流が支配的な場合であることもこれまでの研究から明らかになっている¹¹⁾。

このことから二重拡散による振動流は温度による対流と濃度による対流が共存し、その強さが同じ程度のときに起こることが予想される。

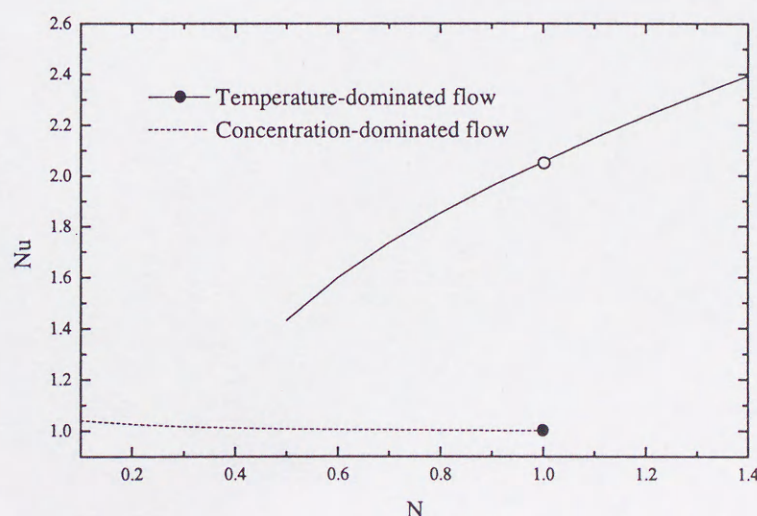


Fig. 4-3 Analytical solution when $R_c=100, Le=10$ and $0.1 \leq N \leq 1.4$.

4.3.2 振動発生機構

数値解析により $R_c=100, Le=10$ のときには $0.59 \leq N \leq 0.84$ という範囲で振動が発生することがわかった。つまり Fig.4-3 で表される解析解において多重解が発生している N の範囲内において振動解が得られることがわかる。このときの振動の形態を詳細に検討するために、 $N=0.80$ における Nu の経時変化を Fig.4-4 に示す。この図から振動はほぼ単純な振動であることがわかる。また、このときの領域内の対流の様子と Nu 数の値について Fig.4-5 に示す。この場合、対流は時計回りであり温度差による対流が支配的であることがわかる。図から、振動現象は以下の二つの対流構造の繰り返しとみることが出来る。すなわち、一つは単一の対流セルで構成されており、その強度は比較的大きく、これに伴い Nu も大きい。もう一つは、対流セルが上下二つに分離し、それに伴って流れが弱くなり Nu も小さい場合である。また Nu が大きい場合($Nu=2.154$)と小さい場合($Nu=1.492$)の温度分布、濃度分布を Fig.4-6 に示す。 $Nu=2.154$ のときは流れが強いため、温度及び濃度分布に及ぼす影響が著しく、特に濃度分布においては高濃度の部分が右側面にまで発達していることがわかる。これに対して $Nu=1.492$ の場合は流れが弱いため、高温部分及び高濃度の部分があまり発達していない。そのため Nu の値に違いがでていることがわかる。

$N=0.80$ の場合は単純な振動であったが、 N が変化すると振動の様子も違ったものになる。 $N=0.59$ における Nu の経時変化を Fig.4-7 に示す。この図からわかるとおり $N=0.59$ の場合は単純な振動ではなくカオス的な振動が発生していることがわかる。 $N=0.59$ は $R_c=100, Le=10$ の場合に振動が発生する最小の N の値である。これより小さい N では濃度差による対流支配の定常解、つまり Fig.4-3 において点線で表されている解析解の結果が得られる。従って、 $N=0.59$ の場合には時計回りの対流、つまり温度差による対流が主流になっているが、濃度差による対流の影響も大きくなる。Fig.4-8 に Nu が 1.850 と 1.065 のときの流れ関数と温度分布と濃度分布を示す。 $Nu=1.850$ のときは領域内に強い対流が生じていて高濃度部分が左の側面から右の側面へと発達していることがわかる。しかし N が比較的小さいことから、濃度勾配による対流の寄与が大きいため、左側面の上部と右側面下部に流れ関数が 0、つまり対流の方向が反時計回り、の部分があることがわかる。これが $Nu=1.065$ の場合にはよりはっきりする。主流である時計回りの対流は上下に完全に分裂し、中央には反時計回りの弱い対流が存在している。このことにより温度分布や濃度分布は領域の上部や下部においては対流の影響で高温部分や高濃度の部分の張り出しがみられるが、中央付近では逆方向の対流が生じているため高濃度の部分が領域下部に入り込むような傾向もみられる。カオス的な振動の変化はこのように濃度差による対流の影響が

大きくなり、複雑な変動を示すために起こるということが明らかになった。なお、多孔質体内という一般的に流れが遅いと考えられている系でカオス的な流れが生じるという報告は Kimura ら¹²⁾¹³⁾によるものがあるが、この研究は下方加熱による自然対流問題でレイリー数を上げていった場合の計算であり、本研究のような低レイリー数においてカオス的な現象が見いだされたのは初めてである。

また、比較のために $N=0.3$ における濃度勾配支配の場合と、 $N=1.5$ における温度勾配支配の場合の温度分布と濃度分布を Fig.4-9 に示す。 $N=0.3$ の場合は反時計回り、 $N=1.5$ の場合は時計回りの対流が発生していてそれによって温度分布や濃度分布が変化していることがわかる。

次に、振動解が得られた場合の平均ヌッセルト数 Nu_{av} と解析解について Fig.4-10 に示す。この図から Nu_{av} は 2 つの解析解の間に存在し、 N が大きくなると Nu_{av} も大きくなることがわかる。これまでの計算から、振動解は温度による対流と濃度による対流の共存によって起こり、振動流では温度による対流が支配的であることも明らかとなっている。また、 N_{min} 以下つまり N が小さい場合には濃度による対流が、 N_{max} 以上では温度による対流が支配的である。このことから、振動が発生する N においても N が小さいときには濃度による対流の影響が大きく、温度による対流が抑制されることによって Nu_{av} は濃度差支配の解析解に近い値をとる。しかし、 N が大きくなると温度による対流の影響が強くなり、 Nu_{av} の値は温度差支配の解析解の値に近づき、 $N > N_{max}$ では解析解に一致する。

以上のことから、浮力比 N の違いによる振動解の変化とその機構が明らかになった。

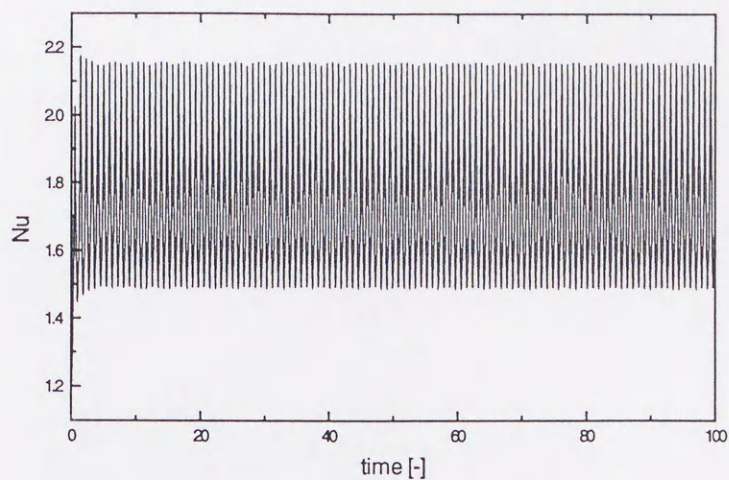


Fig. 4-4 Oscillation of Nu when $R_c=100$, $Le=10$ and $N=0.80$

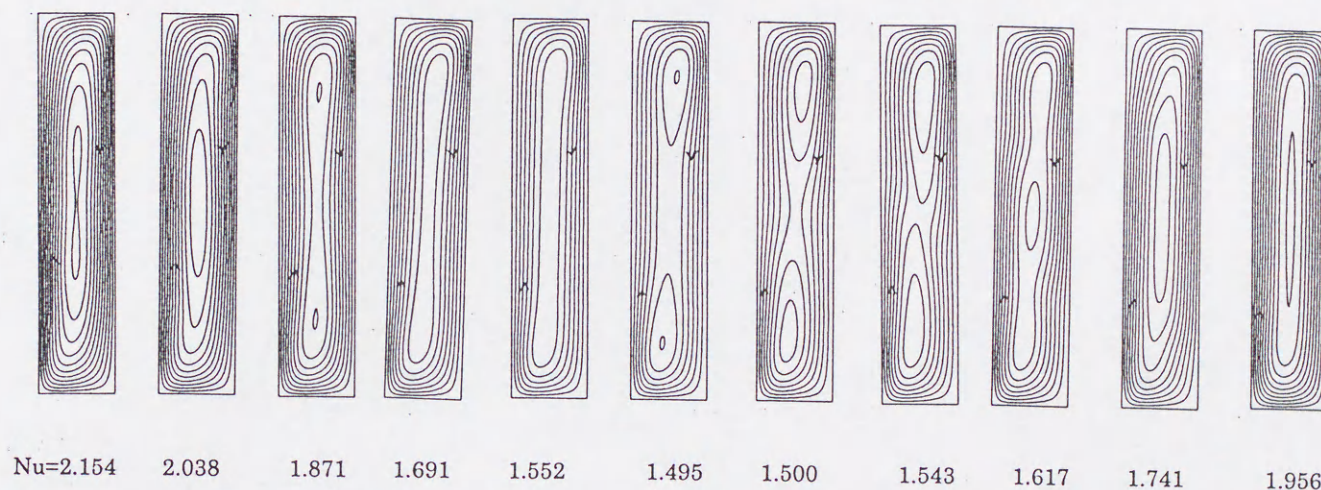


Fig. 4-5 The variation of stream lines in a cycle of oscillation when $R_c=100$, $Le=10$ and $N=0.80$ ($\Delta\psi=2.0$).

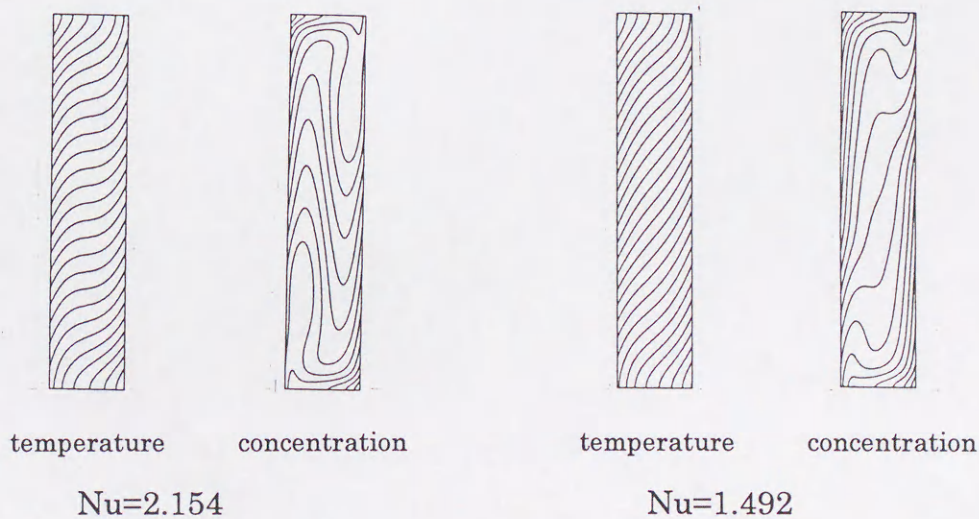
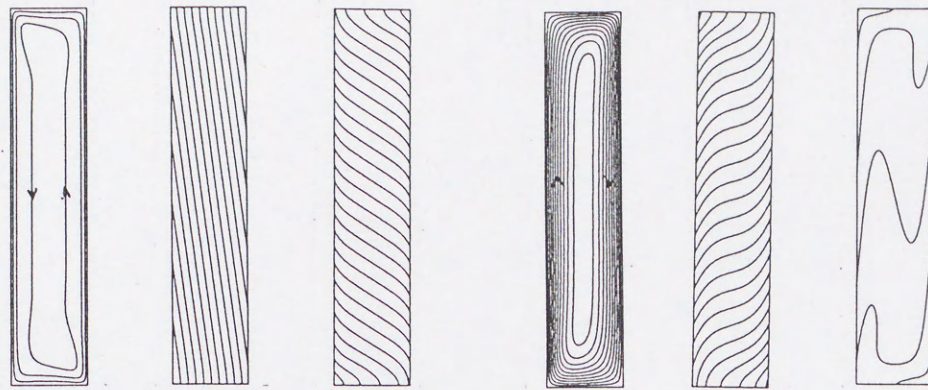


Fig. 4-6 Distributions of temperature and concentration for large Nu ($Nu=2.154$) and small Nu ($Nu=1.492$) when $R_c=100$, $Le=10$ and $N=0.80$ ($\Delta\phi=0.2$ and $\Delta\theta=0.1$).



stream lines temperature concentration stream lines temperature concentration

$N=0.3$, $Nu=1.0247$

$N=1.5$, $Nu=2.338$

$(\Delta\psi=0.5, \Delta\phi=0.2 \text{ and } \Delta\theta=0.2)$

$(\Delta\psi=2.0, \Delta\phi=0.2 \text{ and } \Delta\theta=0.1)$

Fig. 4-9 Comparison between $N=0.3$ and 1.5 when $R_c=100$ and $Le=10$.

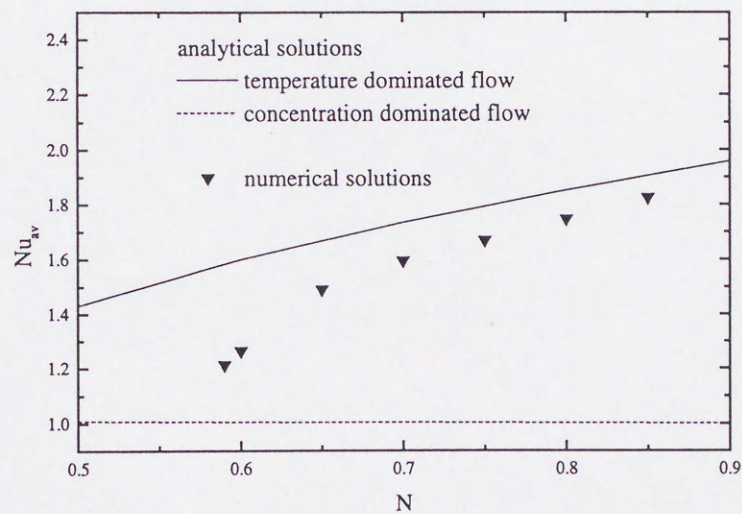


Fig. 4-10 Analytical solution and numerical average Nusselt number when $R_c=100, Le=10$ and $0.5 \leq N \leq 0.9$.

4.3.3 振動解が得られる浮力比の範囲

Masuda、Alavyoon ら¹³⁾によるこれまでの計算から、振動解が得られるのはレイリー数とアスペクト比がある程度大きく、ルイス数が2以上のときに発生することが知られている。そして4.3.1や4.3.2で示したように、浮力比がある範囲内にある時に温度差による対流と濃度差による対流のバランスにより振動流が発生する。振動が発生する浮力比の範囲を $N_{\min} \leq N \leq N_{\max}$ と表し、 $R_c=50, 100, 200, 300$ の場合の Le 数と N_{\min}, N_{\max} の関係をマップにしたものを Fig.4-11 に示す。ここで、 N_{\min}, N_{\max} を決定する際には0.01刻みの計算を行い、 Le 数については2,5,10,50,100の場合について計算を行った。なお、Thompson ら¹⁴⁾による $Na_2CO_3-H_2O$ 系の実験では $Le=107$ となっている。この図から $R_c=50$ と100の場合はルイス数が2では振動の発生する N の範囲は小さく、それが20くらいまではルイス数の増加によって広がるが、それ以降はほぼ一定となる。そして N_{\min} と N_{\max} の値はルイス数が大きくなるにつれて単調に減少していることがわかる。ところが $R_c=200$ と300の場合はこれら二つの場合と大きく異なっている。 $R_c=200$ の場合にはルイス数が5の場合にいったん N_{\max} が小さくなるがルイス数が10となると N_{\max} が大きくなり解析的には一つしか値を持たない $N>1.0$ の場合にも振動解を持つようになる。さらにルイス数が増えると N_{\max} は単調に減少することがわかる。 $R_c=300$ の場合も同じようにルイス数の変化により N_{\max} は極大値を持つことがわかり、同じように $N>1.0$ の場合にも振動解が得られる範囲が広がっていることがわかる。なお $R_c=200, 300$ の場合とも N_{\min} は単調に減少していることがわかる。

このように $R_c=200$ と300の場合には N が1以上、つまり1つの解析解しか得られない範囲においても振動解が得られている。このような現象がなぜ起こるのかといったことについてはまだ明らかではない。しかし、これまでの計算から振動解は温度差による対流が支配的で、しかも濃度差による対流の影響も強いときに起こることがわかっている。また、 Le 数が1の場合には振動解が得られていない。 Le 数は温度による境界層と濃度による境界層の比であり、温度による境界層と濃度による境界層の差がある程度無いと振動が発生しない、あるいは振動が発生するパラメータの範囲が狭くなると考えられる。ここで、温度に対するレイリー数は

$$R_T = R_c \left(\frac{N}{Le} \right) \quad (4.12)$$

と表すことができる。これを N が1以上の場合に振動解が得られた場合についてあてはめてみると、 $R_c=200, Le=10, N=1.0$ の場合 $R_T=20$ 、また $R_c=300, Le=10, N=1.1$ の場合 $R_T=33$

となる。振動が発生している他の場合と比べても Le 数が小さい場合をのぞいて R_T の値が大きくなっている。このようなことから R_c が 200 以上になった場合の振動には R_T の値も関係してくるものと考えられる。

このようなマップにより、この範囲から外れる場合は定常解が得られる解析解が適応できるため、側壁が温度勾配及び濃度勾配一定の場合の多孔質体内二重拡散についての熱伝達特性等が明らかとなった。

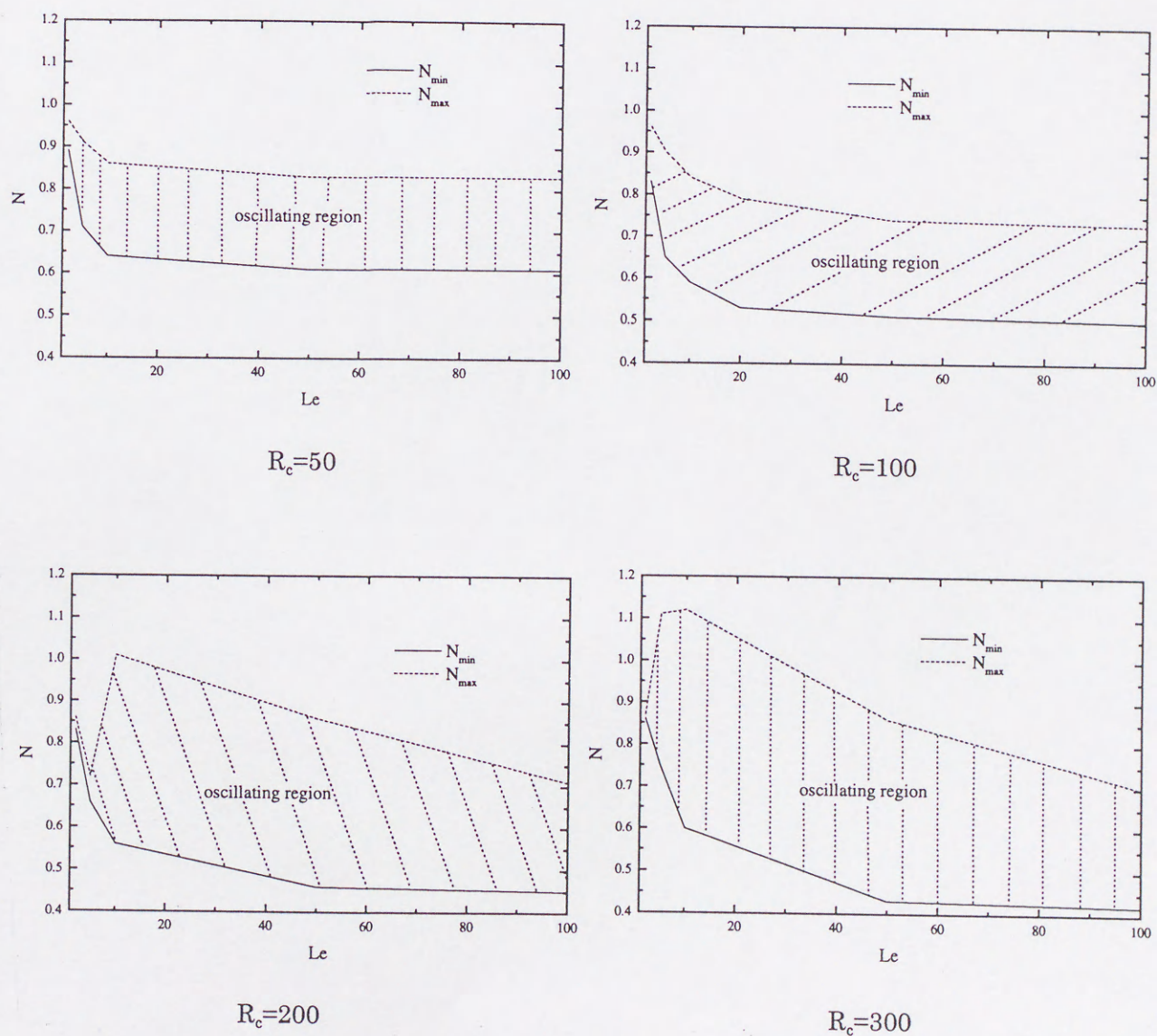


Fig.4-11 The range of numerically oscillating solution when $R_c=50, 100, 200$ and 300

4.3.4 パラメータの変化による振動特性の変化

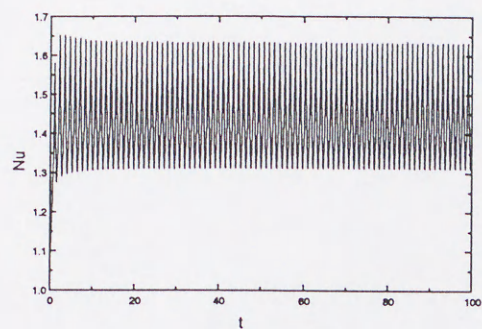
これまでの計算から浮力比 N が振動の様子に大きな影響を与えることが予想される。そのため、 $R_e=50, Le=10$ の場合における N の違いによる振動の変化について Nu の時間変化と振動が安定してからのパワースペクトルをとったものを Fig.4-12 に示す。なお Fig.4-12 の横軸は無次元周波数であり、

$$f = \frac{1}{t} = \frac{Dt'}{h^2} \quad (4.13)$$

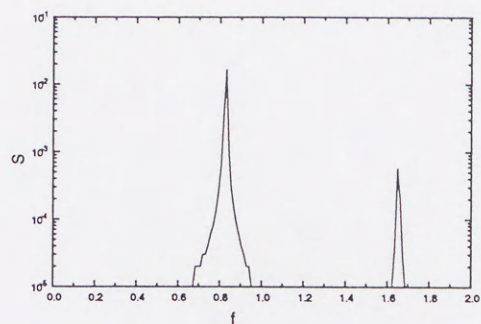
のように定義される。この場合 N_{\max} 付近はおよそ 0.86 であり、 N_{\min} は 0.64 である。この図から、 $N=0.85, 0.80$ のときは、高周波成分が見られるもののほぼ単純の振動であることがわかる。ただ $N=0.85$ の場合に比べて $N=0.80$ の振動の方がやや低周波数側にシフトしていることがわかる。 $N=0.75$ になると振動はやや複雑になり、パワースペクトルをみても複数の周波数成分により振動が構成されていることがわかる。さらに $N=0.65$ となった場合はカオス的な振動となっていることがわかる。パワースペクトルをみても多くの成分が混在していることが明らかである。このように N_{\max} 付近では単調な振動が得られ N_{\min} 付近ではカオス的な振動となる、という傾向は $R_e=100$ の場合にもみられた。

次に、レイリー数とルイス数の変化による振動の変化を Fig.4-13 に示す。なおこの場合は $N=0.80$ で、発生する振動にはカオス的なものはなくどれも比較的単純な振動のみである。この図からわかるとおり単純な振動が発生している場合、ルイス数が小さくなると振動は低周波数側にシフトし、振幅も大きくなることがパワースペクトルの比較により明らかになった。またレイリー数が大きくなると、振動は高周波側にシフトし、振幅も大きくなることが明らかとなった。また Fig.4-13 から $R_e=100, Le=10, N=0.8$ の場合には高周波数成分が発生していることもわかった。

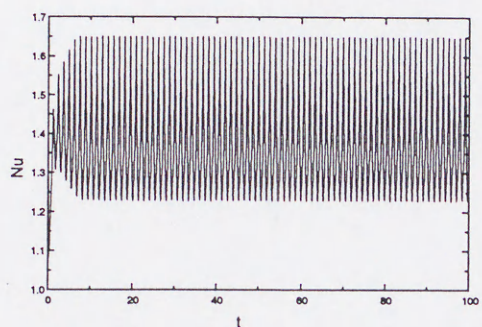
このように各パラメータの変化により振動の様子が大きく変動することがわかった。特に振動に対して大きな影響を与えるパラメータは浮力比である N であることがわかった。



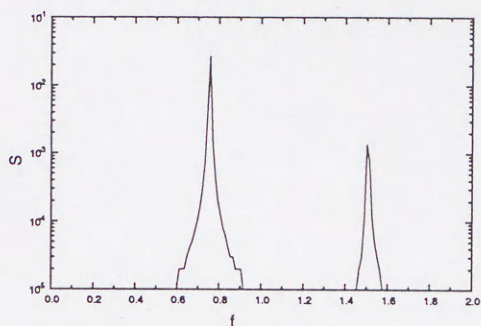
$N=0.85$



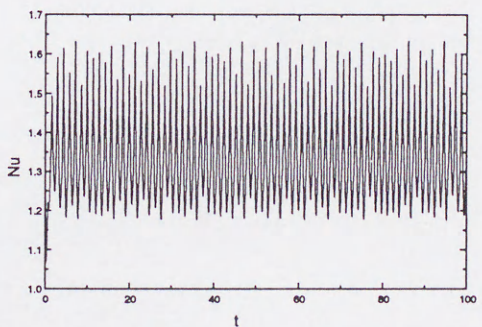
$N=0.85$



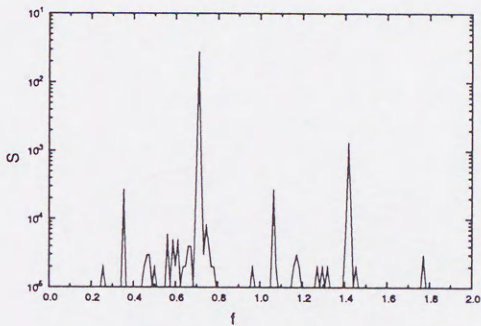
$N=0.80$



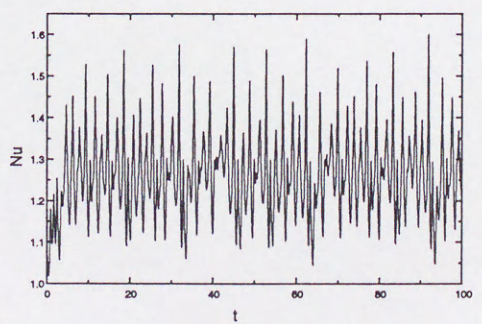
$N=0.80$



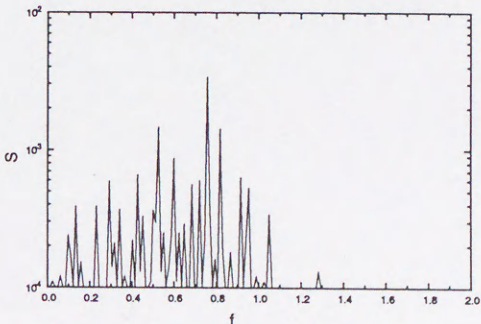
$N=0.75$



$N=0.75$



$N=0.65$



$N=0.65$

Fig. 4-12 Oscillation of Nu and the power spectrum when $N=0.85, 0.80, 0.75$ and 0.65

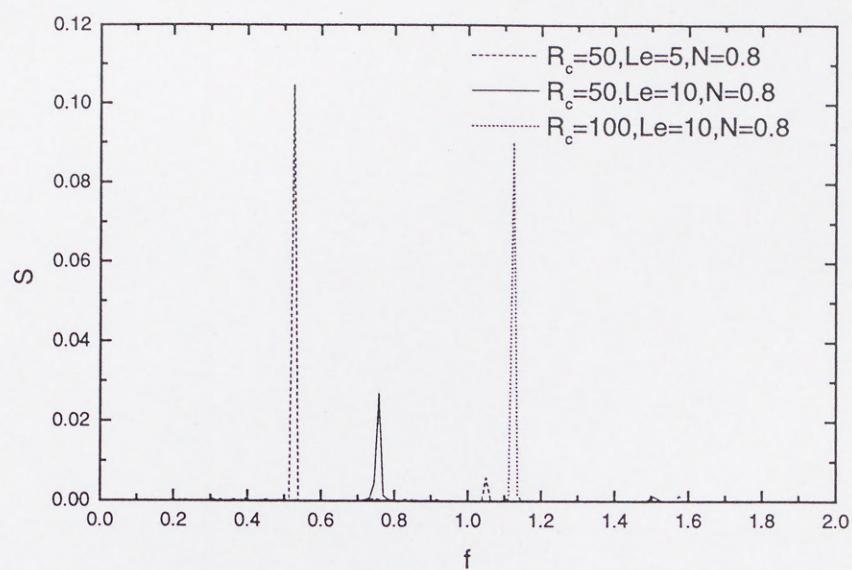


Fig.4-13 Comparison of the peak of power spectrums

4.4 結言

二次元矩形容器においてその側壁の温度勾配及び濃度勾配が一定で、濃度による対流と温度による対流の向きが逆である場合についての多孔質体内二重拡散について差分法を用いた数値解析を行った。その結果、解析解により二重解が得られる浮力比 N の範囲近傍において振動解が得られること、そしてその振動は、温度差による対流が主流である本系において、濃度差による対流の寄与が大きいところで起こることがわかった。また、レイリー数及びルイス数に対する振動解が得られる N の範囲を求めてマップを作成した。そして各パラメータにより振動がどのように変化するか調べた。その結果振動の形態に対して N の影響が強く、 N_{\max} 付近では単調な振動が、 N_{\min} 付近ではカオス的な振動が得られることがわかった。

Appendix 4- I

側壁が等流束である場合の多孔質体内二重拡散の解析解

4a.1 仮定及び基礎式

本章において計算値との比較を行っている解析解の導出方法について説明する。Fig4-2で表される系、つまり左右の側壁において同じ大きさで一定の熱及び物質流束が与えられている系を考える。上下の壁面の影響が無視でき、定常状態を仮定すると以下の式が得られる。

$$\mathbf{u} = v(x)\mathbf{e}_y \quad (4a.1)$$

$$\theta = S_c y + \vartheta_c(x) \quad (4a.2)$$

$$\phi = S_T y + \vartheta_T(x) \quad (4a.3)$$

$$\nabla P = \{\Pi_y - R_c(S_c - NS_T)y\}\mathbf{e}_y \quad (4a.4)$$

ここで S_c, S_T, Π_y は定数で $v(x), \vartheta_c(x), \vartheta_T(x)$ は求める関数である。

ここで定常状態における無次元基礎式は次式で表すことが出来る。

$$\mathbf{u} = -\nabla P - R_c(\theta - N\phi)\mathbf{e}_y \quad (4a.5)$$

$$\mathbf{u} \cdot \nabla \theta = \nabla^2 \theta \quad (4a.6)$$

$$\mathbf{u} \cdot \nabla \phi = \nabla^2 \phi \quad (4a.7)$$

そして無次元境界条件は

$$x = \pm 1 \text{ において } \frac{\partial \theta}{\partial x} = -1, \frac{\partial \phi}{\partial x} = -1, u = 0 \quad (4a.8)$$

となる。

式(4a.1)～(4a.4)を式(4a.5)～(4a.8)に代入すると

$$v(x) = -\Pi_y - R_c \vartheta_c(x) + R_c N \vartheta_T(x) \quad (4a.9)$$

$$v(x) S_c = \frac{d^2 \vartheta_c}{dx^2} \quad (4a.10)$$

$$v(x) S_T = Le \frac{d^2 \vartheta_T}{dx^2} \quad (4a.11)$$

$$x = \pm 1 \text{ において } \frac{d \vartheta_c}{dx} = -1, \frac{d \vartheta_T}{dx} = -1 \quad (4a.12)$$

ここで未知の定数 S_c, S_T, Π_y 及び $v(x), \vartheta_c(x), \vartheta_T(x)$ を求めるために以下に示す各保存則を適用する。

1. 体積

$$\int_{-1}^{+1} v(x) dx = 0 \quad (4a.13)$$

2. 質量

$$\int_{-A}^{+A} \int_{-1}^{+1} \varepsilon \theta dx dy = 2A\varepsilon \int_{-1}^{+1} \vartheta_c(x) dx = 0 \quad (4a.14)$$

3. エンタルピー

$$\int_{-A}^{+A} \int_{-1}^{+1} \sigma \phi dx dy = 2A\sigma \int_{-1}^{+1} \vartheta_T(x) dx = 0 \quad (4a.15)$$

4. 水平面における濃度

$$\int_{-1}^{+1} (\mathbf{u}\theta - \nabla\theta) \cdot \mathbf{e}_y dx = \int_{-1}^{+1} v\vartheta_c dx - 2S_c = 0 \quad (4a.16)$$

5. 水平面におけるエンタルピー

$$\int_{-1}^{+1} (\mathbf{u}\phi - \text{Le}\nabla\phi) \cdot \mathbf{e}_y dx = \int_{-1}^{+1} v\vartheta_T dx - 2\text{Le}S_T = 0 \quad (4a.17)$$

ここで(4a.9)～(4a.11)を境界条件及び積分式(4a.12)～(4a.17)を用いて解く。

4a.2 解法

x 方向の温度分布である ϑ_T と ϑ_c の関係は式(4a.10)と(4a.11)から次のようになる。

$$\frac{d^2\vartheta_T}{dx^2} = \frac{S_T}{\text{Le}S_c} \frac{d^2\vartheta_c}{dx^2} \quad (4a.18)$$

式(4a.18)の微分方程式を解く。ここで境界条件(4a.12)と式(4a.14)(4a.15)から

$$\vartheta_T = \frac{S_T}{\text{Le}S_c} \vartheta_c + \left(\frac{S_T}{\text{Le}S_c} - 1 \right) x \quad (4a.19)$$

となる。式(4a.19)を式(4a.9)に代入して

$$v(x) = -\Pi_y + R_c \left(\frac{NS_T}{\text{Le}S_c} - 1 \right) \vartheta_c(x) + R_c \left(\frac{NS_T}{\text{Le}S_c} - N \right) x \quad (4a.20)$$

となる。式(4a.20)が式(4a.13)(4a.14)を満たすとすれば $\Pi_y = 0$ となる。そして式(4a.10)を式(4a.20)に代入すると次のような二次の微分方程式が得られる。

$$\frac{d^2\vartheta_c}{dx^2} - (R_T S_T - R_c S_c) \vartheta_c = (R_T S_T - NR_c S_c) x \quad (4a.21)$$

ここで R_T は温度に関するレイリー数で

$$R_T = R_c \left(\frac{N}{Le} \right) \quad (4a.22)$$

で与えられる。ここで解析の簡単化のために次の二つのパラメータを導入する。

$$\Omega = \sqrt{(R_T S_T - R_c S_c)} \quad (4a.23)$$

$$B = \frac{R_T S_T - N R_c S_c}{R_T S_T - R_c S_c} \quad (4a.24)$$

ここで式(4a.21)は

$$\frac{d^2 \vartheta_c}{dx^2} - \Omega^2 \vartheta_c = B \Omega^2 x \quad (4a.25)$$

となる。ここで式(4a.25)を解くのであるが、 R_T, R_c, S_T, S_c の値により Ω が実数、0、虚数となりそれによって求められる解も変わってくる。

4a.2.1 Ω が実数の場合

この場合は式(4a.25)を解くと

$$\vartheta_c(x) = \frac{B-1}{\Omega \cosh(\Omega)} \sinh(\Omega x) - Bx \quad (4a.26)$$

式(4a.26)を式(4a.10)に代入することにより速度分布の式が次のように求まる。

$$v(x) = \frac{\Omega(B-1)}{S_c \cosh(\Omega)} \sinh(\Omega x) \quad (4a.27)$$

式(4a.19)(4a.26)(4a.27)を式(4a.16)(4a.17)に代入する。すると S_c 及び S_T に関する式として

$$S_c^2 - \frac{(B-1)^2}{1 + \cosh(2\Omega)} \left(\frac{\sinh(2\Omega)}{2\Omega} - 1 \right) + B(B-1) \left(1 - \frac{\tanh(\Omega)}{\Omega} \right) = 0 \quad (4a.28)$$

$$\left(1 - \frac{1}{Le^2} \right) S_T - \left(\frac{1}{Le S_c} - 1 \right) \left(1 - \frac{\tanh(\Omega)}{\Omega} \right) \left(\frac{B-1}{Le S_c} \right) = 0 \quad (4a.29)$$

ここで R_c と N と Le は与えられているので式(4a.28)と(4a.29)を Newton-Rapson 法を用いて解くことにより S_c と S_T が求められる。

さて S_c と S_T が求められれば Ω と B も求められる。ここでヌッセルト数とシャーウッド数は

$$Sh = \frac{2A}{\frac{1}{2} \int_{-A}^{+A} (\theta|_{x=-1} - \theta|_{x=+1}) dy} \quad (4a.30)$$

$$Nu = \frac{2A}{\frac{1}{2} \int_{-A}^{+A} (\phi|_{x=-1} - \phi|_{x=+1}) dy} \quad (4a.31)$$

と表されるので、式(4a.2)(4a.3)(4a.19)(4a.26)式を代入することにより

$$Sh = \frac{2}{\vartheta_c(-1) - \vartheta_c(+1)} = \left[B - (B-1) \frac{\tanh(\Omega)}{\Omega} \right]^{-1} \quad (4a.32)$$

$$Nu = \left[\frac{S_T}{Le S_c} \frac{1}{Sh} + 1 - \frac{S_T}{Le S_c} \right]^{-1} \quad (4a.33)$$

となる。ここに式(4a.28)(4a.29)で求められた S_c と S_T 、さらに Ω, B を代入することにより Nu と Sh が求められる。

4a.2.2 Ω が虚数の場合

Ω が実数の場合と同じく式(4a.25)を解く。ここで

$$\omega = \sqrt{(R_c S_c - R_T S_T)} \quad (4a.34)$$

というパラメータを導入する。 ω は常に実数である。すると速度分布は

$$v(x) = -\frac{\omega(B-1)}{S_c \cos(\omega)} \sin(\omega x) \quad (4a.35)$$

濃度分布は

$$\vartheta_c(x) = \frac{B-1}{\omega \cos(\omega)} \sin(\omega x) - Bx \quad (4a.36)$$

と表すことが出来る。4a.2.1の場合と同じように S_c 及び S_T に関する式を求めると

$$S_c^2 - \frac{(B-1)^2}{1 + \cos(2\omega)} \left(\frac{\sin(2\omega)}{2\omega} - 1 \right) + B(B-1) \left(1 - \frac{\tan(\omega)}{\omega} \right) = 0 \quad (4a.37)$$

$$\left(1 - \frac{1}{Le^2} \right) S_T - \left(\frac{1}{Le S_c} S_T - 1 \right) \left(1 - \frac{\tan(\omega)}{\omega} \right) \left(\frac{B-1}{Le S_c} \right) = 0 \quad (4a.38)$$

ここでも Newton-Rapson 法を用いて S_c と S_T を求めることが出来る。しかし物理的に意味のある値が求められるのは $S_c - NS_T < 0$ かつ $\omega < \pi$ のときのみである。

シャーウッド数については

$$Sh = \left[B - (B-1) \frac{\tan(\omega)}{\omega} \right]^{-1} \quad (4a.39)$$

と求められる。なおヌッセルト数については式(4a.33)と同じである。

4a.2.2 Ω が0の場合

Ω が0の場合は Ω の定義から

$$S_T = \frac{Le}{N} S_c \quad (4a.40)$$

式(4a.40)を式(4a.25)に代入すると

$$\vartheta_c(x) = \frac{1-N}{2} R_c S_c \left(\frac{x^3}{3} - x \right) - x \quad (4a.41)$$

となる。式(4a.41)を式(4a.10)に代入すれば速度分布の式

$$v(x) = (1-N) R_c x \quad (4a.42)$$

が求められる。温度分布に関しては(4a.40)を式(4a.19)に代入して

$$\vartheta_T(x) = \frac{1}{N} \vartheta_c(x) + \left(\frac{1}{N} - 1 \right) x \quad (4a.43)$$

となる。

S_c に関しては式(4a.41)(4a.42)を(4a.16)を用いて解くと

$$S_c = \frac{(N-1)^2}{3(Le^2-1)} R_c \quad (4a.44)$$

となる。式(4a.40)に代入すれば S_T も求められる。式(4a.40)～(4a.44)を(4a.17)に代入して解くと

$$\frac{2}{15} (N-1)^3 R_c^2 + N - Le^2 = 0 \quad (4a.45)$$

この式より $\Omega=0$ における N の値を求めることが出来る。この式を解くのはさほど難しいことではない。しかし $Le>2, R_c>10$ の場合には近似的に

$$N \approx 1 + \left(\frac{15}{2} \right)^{1/3} \left(\frac{Le}{R_c} \right)^{2/3} \quad (4a.46)$$

となる。計算を行った条件ではほぼ $Le>2, R_c>10$ を満たしているので、式(4a.46)は $\Omega=0$ の解を求める場合に役に立つ近似式である。

4.5 使用記号

A	=	aspect ratio $=H/h$	[-]
B	=	parameter defined by equation (4a.24)	[-]
c	=	concentration	[mol m ⁻³]
D	=	solute diffusivity	[m ² s ⁻¹]
f	=	non-dimensional frequency $=h^2/Dt'$	[-]
g	=	acceleration of gravity	[m s ⁻²]
2h	=	enclosure width	[m]
2H	=	enclosure height	[m]
k	=	permeability	[m ²]
Le	=	Lewis number	[-]
N	=	buoyancy ratio	[-]
Nu	=	Nusselt number	[-]
Nu _{av}	=	average Nusselt number	[-]
P	=	pressure	[-]
R	=	Rayleigh-Darcy number	[-]
S	=	power spectrum	[-]
S _c	=	solutal vertical gradient	[-]
S _T	=	thermal vertical gradient	[-]
Sh	=	Sherwood number	[-]
t	=	non-dimensional time $=Dt'/h^2$	[-]
t'	=	time	[s]
T	=	temperature	[K]
u	=	non-dimensional velocity vector $=hu'/D$	[-]
u'	=	velocity vector $=(u',v')$	[m/s]
x	=	non-dimensional horizontal coordinate $=x'/h$	[-]
x'	=	horizontal coordinate	[m]
y	=	non-dimensional vertical coordinate $=y'/h$	[-]
y'	=	vertical coordinate	[m]

Greek symbols

α	=	coefficient of thermal expansion	$[K^{-1}]$
β	=	coefficient of concentration expansion	$[m^3 \text{ mol}^{-1}]$
ε	=	porosity ratio	$[-]$
ϕ	=	non-dimensional temperature = $c/\Lambda_T h$	$[-]$
ϑ	=	horizontal profile	$[-]$
κ	=	thermal diffusivity	$[m^2 s^{-1}]$
Λ	=	horizontal gradient prescribed on the side wall	$[K m^{-1}]$ or $[mol m^{-4}]$
ν	=	kinematic viscosity	$[m^2 s^{-1}]$
Π	=	parameter	$[-]$
θ	=	non-dimensional concentration = $c/\Lambda_c h$	$[-]$
σ	=	heat capacity ratio	$[-]$
Ω	=	parameter defined by equation (4a.23)	$[-]$
ψ	=	stream function	$[-]$

Subscripts

av	average
c	solutal
max	maximum
min	minimum
T	thermal
x	x direction
y	y direction

Superscript

'	dimensional
---	-------------

4.6 参考文献

- 1) C. Beckermann, et al; Phys. Chem. Hydrodyn., 10, 1988, 195
- 2) M.S. Christenson, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 32, 1989, 69
- 3) A.H.H. Engel, et al; Wärme Stoffübertrag, 24, 1989, 27
- 4) 西村龍夫, et al; 日本機械学会論文集(B編), 58, 1992, 490
- 5) D.G. Neilson, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 33, 1990, 367
- 6) M.E. Thompson, et al; J. Fluid Mech. 187, 1988, 409
- 7) 西村龍夫; 化学工学, 61, 1997, 924
- 8) F. Alavyoon, Int. J. Heat Mass Transfer, 36, 1993, 2479
- 9) F. Alavyoon, Proc. 2nd JSME-KSME Thermal Engineering Conf., 3, 1992, 165
- 10) O. Trevisan, et al; ASME J. Heat Transfer, 109, 1987, 104
- 11) F. Alavyoon, et al; Int. J. Heat Mass Transfer, 37, 1994, 195
- 12) S. Kimura, et al; J. Fluid Mech. 166, 1986, 269
- 13) N. Kladias, et al; J. ASME J. Heat Transfer, 112, 1990, 675
- 14) M.E. Thompson, et al; J. Fluid Mech., 187, 1988, 409

第5章 総括

本論文では結晶成長プロセスに関わる熱対流現象について、数値解析を用いて明らかにした。以下に本論文の内容に関しての総括を行う。

第1章においては、結晶成長プロセス(融液成長あるいは溶液成長)における熱対流現象の重要性について、問題点を明らかにすることで本論文の目的を明らかにした。そして特に Floating Zone 法における融液内の流れに関する研究と、多孔質体内二重拡散問題について取り扱うこととした。

そして既往の研究について紹介し、本論文の立場を明確にした。

第2章においては Floating Zone 法による酸化物単結晶育成時に発生すると考えられる集光加熱と融液内対流の関係を明らかにする目的で、液層内マランゴニ対流に及ぼす内部発熱の影響について研究を行った。重力が0の場合に無限の長さを持つ下方加熱半透過性液層内に、光加熱による内部発熱が起こるものとして計算した。つまり液体の吸収係数により対数的に減衰し、それによって液体内部に発熱が起こる系を考えた。

計算の結果、マランゴニ数が1000~100000までの間で計算領域内に大きく分けて5種類の解が得られた。そして内部発熱の程度によってその解の存在範囲、あるいは流れの様子がどう変化するかについて調べた。そして内部発熱により流れは安定化し、領域内の対流セルは増える傾向にあるということを明らかにした。

第3章においては Floating Zone 法におけるシリコン単結晶育成時の融液内の温度場、流れ場、そして界面形状について総合熱解析を行った。総合熱解析プログラムは境界適合座標系を用いて融液等の変形を解析出来るようにした。また加熱方法としては輻射加熱と高周波加熱の二種類の方法を用いた。

輻射加熱の場合は周囲温度がガウス分布を持つものとして計算した。計算の結果、融液内の対流の影響は融液内の温度場や融液/多結晶界面や融液/結晶界面に大きな影響を与えるほど強いことがわかった。そして融液内の対流はマランゴニ対流支配であることも明らかにした。そして FZ 炉に関する操作条件である周囲温度や結晶成長速度による影響も明らかにした。特に結晶成長速度を上げると融液/結晶界面はより平坦に、融液/多結晶界面は融液に対してより凸になることがわかった。

高周波加熱の場合は、コイルからの電磁場を直接解くことにより発熱量及びローレンツ

力とを求め、それを利用して融液の流れ等の計算を行った。計算の結果、電磁力に起因する MHD 対流が非常に強いことがわかった。またマランゴニ対流も対流セルパターンに影響を及ぼすことが示された。また融液自由表面形状が MHD 対流の向きに対して大きな影響があることが示された。

第 4 章においては溶液からの結晶成長の系において観察される多孔質体内二重拡散対流についての計算を行った。計算は側壁が熱流束及び濃度流束が一定という条件で行った。特に温度による対流と濃度による対流の向きが逆で、その強さが同じくらいのときに発生する振動流について着目して計算を行った。その計算によって、振動発生に関して最も重要なパラメータが浮力比であり、浮力比がある範囲にあるときに振動が起こることを明らかにした。そして振動解が発生する機構を明らかにし、様々なパラメータの変化による振動の変化を明らかにした。そして浮力比が振動解の得られる下限近くにおいてはカオスのような振動が発生することがわかった。

以上、本論文では結晶育成プロセスに関係する様々な対流について取り扱ってきた。本研究ではまだ基礎的な解析の段階で実際の結晶成長プロセスにすぐに役に立つというものではないが、結晶の品質に直接関わる対流現象についての理解に対する一助となると考える。今後、Floating Zone 法による結晶育成時の熱移動現象の解析に関しては第 2 章で取り扱ったような光に対して半透過性と考えられる酸化物の取り扱い、また現在のプログラムを拡張して非定常現象や 3 次元を扱えるようにする必要があると考える。また多孔質体内二重拡散については振動解の得られる範囲についてのマップを様々なパラメータについて作成することによって、側壁が熱流束及び濃度流束が一定である多孔質体内二重拡散現象についての熱及び物質移動特性を振動解も含めた形で明らかにすることが出来る。これが完成すれば結晶育成のみならず工業的に広い範囲での重要な基礎データとなると考えられる。

謝辞

本研究の遂行ならびに本論文の作成に当たり、終始ご指導ならびにご鞭撻をいただきました宝澤光紀教授に深く感謝いたします。

本論文をとりまとめるに当たり、適切なご助言をいただきました鈴木睦教授、三浦隆利教授に感謝いたします。

本研究全般について適切な指導とご意見をいただきました塚田隆夫助教授に感謝いたします。

FZ 法の数値計算について適切なご助言をいただきました九州大学機能物質化学研究所の今石宣之教授、多孔質体内二重拡散の数値計算について適切なご助言をいただきました金沢大学工学部の木村繁男教授、FORSMARKS KRAFTGRUPP(スウェーデン)の Farid Alavyoon 博士に感謝いたします。

社会人ドクターとして編入学することについて理解を示していただき、その後も様々な面で支援をしてくださいました、小野雅俊東北工業技術研究所前所長に感謝いたします。

社会人ドクターと職場の仕事の両立について様々な面で支援をいただきました、東北工業技術研究所丹羽吉夫所長、池内準金属素材部部長、鷲見新一基礎物性研究室長をはじめとする基礎物性研究室の皆様感謝いたします。

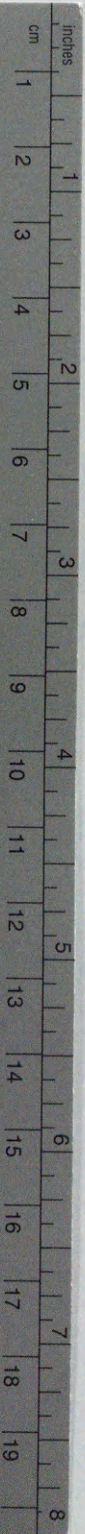
論文をまとめるに当たり、貴重な資料を提供していただきました久保正樹博士及び宝澤研究室の皆様感謝いたします。

マランゴニ対流及び FZ 法の研究においては、(財)宇宙環境利用推進センターとの共同研究を行いました。この共同研究を支えていただきました(財)宇宙環境利用推進センターと東北工研企画課の皆様感謝いたします。

本研究に使用した計算機は一部工業技術院情報計算センター(RIPS)所有のワークステーション及びスーパーコンピューターを使用いたしました。計算に便宜を図ってくれました RIPS の職員及び SE に感謝いたします。

最後に、つらいときに私を支えてくれました両親と妻恵美子、娘寛子に感謝いたします。

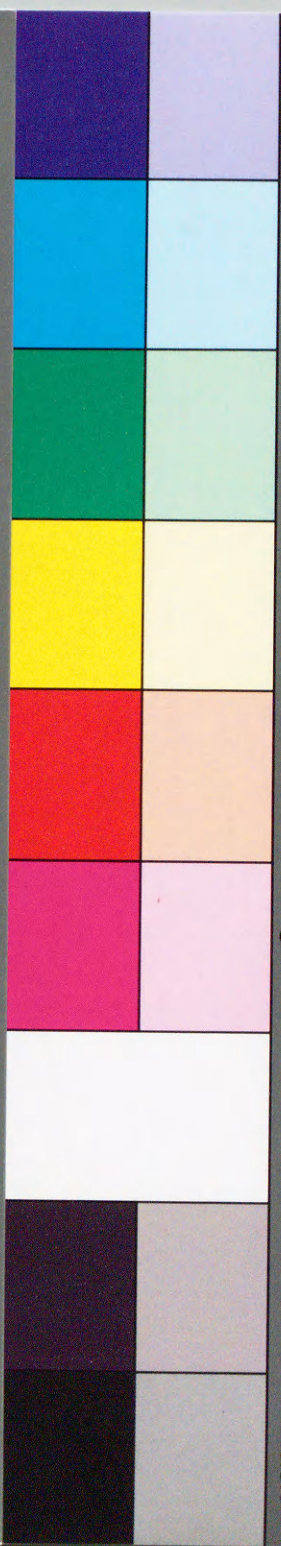




Kodak Color Control Patches

© Kodak, 2007 TM: Kodak

Blue Cyan Green Yellow Red Magenta White 3/Color Black



Kodak Gray Scale



© Kodak, 2007 TM: Kodak

A 1 2 3 4 5 6 M 8 9 10 11 12 13 14 15 B 17 18 19

